

FORRÓ RÉSZECSKÉK VIZSGÁLATA
PhD értekezés

KERKÁPOLY ANIKÓ

TÉMAVEZETŐK: DR. VAJDA NÓRA
DR. ZAGYVAI PÉTER

BUDAPESTI MŰSZAKI ÉS GAZDASÁGTUDOMÁNYI EGYETEM
NUKLEÁRIS TECHNIKAI INTÉZET

(2005)

Köszönetnyilvánítás

Mindenekelőtt szeretném megköszönni témavezetőimnek, Dr. Vajda Nórának és Dr. Zagyvai Péternek, a sok segítséget és tanácsot, amit PhD munkám elkészítéséhez adtak. Szintén köszönettel tartozom Pintérné Dr. Csordás Tóth Annának az elektronmikroszkópos elemzésekért. Köszönöm a támogatását a BME NTI többi munkatársának is, különösképpen a Radiokémiai és Dozimetria Csoport mindennapos segítségeit.

Végezetül, de nem utolsósorban köszönöm férjem, Fekete Róbertnek a segítségét a MATLAB program elkészítésében, valamint egész családom türelmét.

Alulírott Kerkápoly Anikó kijelentem, hogy ezt a PhD értekezést magam készítettem és abban csak a megadott forrásokat használtam fel. Minden olyan részt, amelyet szó szerint, vagy azonos tartalomban, de átfogalmazva más forrásból átvettem, egyértelműen, a forrás megadásával megjelöltem.

Budapest, 2005. április. 10.

Tartalomjegyzék

I. Bevezetés, célkritériumok	1
II. Irodalmi összefoglalás	2
1. Környezeti mintákban levő forró részecskék.....	2
1.1. A részecskék csoportosítása tulajdonságaik alapján.....	2
1.2. A forró részecskék terjedése.....	2
1.3. Tulajdonságaikkal, terjedésükkel kapcsolatos vizsgálatok.....	2
1.4. Forró részecskék dozimetriai hatása, dózisbecslések.....	3
1.5. A részecskék csoportosítása keletkezésük, kibocsátási helyük alapján.....	4
1.5.1. Csernobili eredetű részecskék.....	4
1.5.2. Légköri nukleáris fegyverkísérletekből származó részecskék.....	5
1.5.3. Egyéb forrásokból származó forró részecskék.....	6
2. Részecskék vizsgálatára alkalmas módszerek.....	8
2.1. Autoradiográfia.....	9
2.1.1. Az autoradiográfia alapja.....	9
2.1.2. Az autoradiográfia alkalmazhatósági köre.....	9
2.1.3. Autoradiográfiai filmek.....	9
2.1.4. Felbontóképesség.....	10
2.1.5. Az autoradiográfiai felvétel kiértékelése.....	10
2.1.6. Az autoradiográfiai felvétel számszerű kiértékelése.....	10
2.1.7. Forró részecskék teljes béta- ill. teljes alfaaktivitásának becslése autoradiográfiai képek alapján.....	11
2.1.8. Optimalizálási technikák.....	11
2.1.9. Az autoradiográfia előnyei.....	12
2.1.10. Az autoradiográfia hátrányai, nehézségei.....	12
2.2. Nyomdetektoros vizsgálatok.....	12
2.3. Részecskék elkülönítése digitális képfeldolgozó rendszerek alkalmazásával.....	13
2.4. Mintafelezési módszer.....	14
2.5. Nyalábtechnikák.....	15
2.5.1. Az elektronnyalábos technikák.....	15
A transzmissziós elektronmikroszkóp.....	15
A pásztázó elektronmikroszkóp.....	16
A pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatok alapjául szolgáló kölcsönhatások.....	16
A pásztázó elektronmikroszkópok felépítése és jellemzői.....	17
Elektronsugaras mikroanalízis.....	17
Mintaelőkészítés.....	18
2.5.2. A részecskenyalábos és röntgenyalábos (XRF) technikák.....	18
2.6. Tömegspektrometriás módszerek.....	18
2.7. Alkalmazások a forró részecskék kutatásában.....	19
2.8. Radioanalitikai módszerek.....	20
2.8.1. Gamma-spektrometria.....	20
2.8.2. Bétaszámlálás és béta-spektrometria.....	20
2.8.3. Alfa-spektrometria.....	20
2.8.4. Gamma-, béta és alfa-spektrometria alkalmazásai a forró részecskékutatásban.....	21
3. Nem környezeti mintákban jelenlevő forró részecskék - primerköri forró részecskék.....	23
3.1. Primervíz szennyeződése, forró részecskék kikerülése a hűtőközegbe.....	23
3.1.1. Hibatípusok (Mikro- és makrohibák).....	23
3.2. Meghibásodási statisztikák.....	23

4. Fűtőelem-meghibásodással kapcsolatos vizsgálatok.....	24
4.1. Hibás fűtőelemek azonosítása.....	24
4.2. Melegkamrás roncsolásos vizsgálatok.....	24
4.3. A fűtőelemek állapotának értékelése a primervíz aktivitása alapján, analitikai és modell számítások segítségével.....	24
4.4. A paksi fűtőelemek állapotának értékelése.....	25
4.5. A fűtőelemek állapotának értékelése a paksi atomerőműnél a primervíz mérések alapján.....	25
4.5.1. Hibás fűtőelemek kiegészének becslése az aktinidák aktivitás arányai alapján.....	26
4.5.2. Aktivitáсарányok a kiegész függvényében.....	26
5. Nem környezeti mintákban jelenlevő forró részecskék - üzemzavari forró részecskék.....	29
5.1. Üzemzavari részecskék, forró részecskék kikerülése a paksi, 2003. áprilisi üzemzavara során.....	29
5.2. Az üzemzavar feltételezett lefolyása a fűtőelem-sérülés szempontjából.....	29
5.3. Az üzemzavart követő aktivitás kibocsátások.....	30
III. Kísérleti rész.....	32
6. Kísérleti munka bevezetése.....	32
7. Autoradiográfia kalibráció.....	33
7.1. Autoradiográfia alkalmazhatóságának vizsgálata.....	33
7.2. Eszközök és módszerek.....	33
7.2.1. Filmek exponálása és előhívása.....	33
7.2.2. Feketedésmérés, a filmek kiértékelése.....	33
7.2.3. Kalibráló források.....	34
Próbamérések radioaktív oldatokkal és szilárd halmazállapotú radioaktív porokkal.....	34
Primerkörű szűrőminták és mikrolecsapásos technikával készített kalibráló források.....	35
7.3. Kalibrációs mérések, a filmek vizsgálata.....	36
7.3.1. Reprodukálhatóság vizsgálata.....	36
7.3.2. A filmek érzékenységének (kontrasztjának) összehasonlítása.....	37
7.3.3. Érzékenység vizsgálat árnyékolással (abszorbens rétegekkel).....	39
7.3.4. A filmek ezüst-bromid tartalmának meghatározása.....	41
7.3.5. A relatív feketedés és az exponálási idő ill. a minta aktivitásának kapcsolata.....	41
7.4. Az autoradiográfia kalibrációjának konklúziói.....	43
8. Normálüzemi vizsgálatok.....	44
8.1. Normálüzemi vizsgálatok során elemzett minták.....	44
8.2. Normálüzemi minták autoradiográfias vizsgálata, az autoradiográfia megvalósítása a forró részecskék vizsgálatához.....	45
8.2.1. A normálüzemi szűrők felvételeinek jellemzői, részecskék relatív (nettó) feketedés eredményeinek vizsgálata.....	45
8.2.2. Részecskék mennyiségének, eloszlásának, a részecskék okozta feketedések méretének vizsgálata.....	49
8.3. Normálüzemi minták elektronmikroszkópos vizsgálata.....	53
8.3.1. Az alkalmazott elektronmikroszkópos technika lényege.....	53
8.3.2. Az elektronmikroszkópos elemzésekhez használt berendezések jellemzői.....	53
8.3.3. Az elektronmikroszkópos vizsgálatok eredményei normálüzemi részecskék esetében.....	54
8.3.4. Korróziós nuklidok eredete a normálüzemi minták esetében.....	54
8.4. Normálüzemi minták radioanalitikai vizsgálata, alfa-spektrometriája.....	57
8.4.1. Radiokémiai elválasztási eljárás.....	57
8.4.2. Az alfa spektrumok felvétele, kiértékelése.....	58
8.4.3. Az alfa-spektrometria mérési eredményei.....	59
8.4.4. Kiegész becslés a normálüzemi minták alapján.....	62

9. Üzemzavari vizsgálatok.....	66
9.1. Elemzett üzemzavari minták.....	66
9.2. Üzemzavari minták autoradiográfiás vizsgálata.....	67
9.2.1. A üzemzavari szűrők felvételeinek jellemzői, részecskék relatív feketedés eredményeinek vizsgálata.....	68
9.2.2. Részecskék mennyiségének, eloszlásának, a részecskék okozta feketedések méretének vizsgálata.....	71
9.3. Üzemzavari minták elektronmikroszkópos vizsgálata.....	74
9.3.1. Az alkalmazott elektronmikroszkópos technika és alkalmazott eszközök.....	74
9.3.2. Az elektronmikroszkópos vizsgálatok eredményei és a korróziós nuklidok eredetének vizsgálata üzemzavari részecskék esetében.....	74
9.4. Üzemzavari minták radioanalitikai vizsgálata, alfa-spektrometria.....	77
9.4.1. Radiokémiai elválasztási eljárás és mérés.....	77
9.4.2. Az alfa-spektrometria mérési eredményei.....	77
9.4.3. Kiegészítés becslés az üzemzavari minták esetében.....	82
10. Környezeti minták vizsgálata.....	87
10.1. Elemzett környezeti minták.....	87
10.2. Forró részecskék elkülönítése környezeti mintákból.....	87
10.2.1. Forró részecskék elkülönítése minta-felezéssel környezeti mintákból.....	87
A Csernobil közeli talajminták felezgetése.....	88
Colomboi homok felezgetése.....	89
10.2.2. Környezeti minták autoradiográfiás vizsgálata.....	89
10.3. Környezeti minták radioanalitikai vizsgálata.....	92
10.3.1. Gamma-spektrometria.....	92
10.3.2. Alfa-spektrometria és radiokémiai elválasztási eljárás.....	92
10.3.3. Az alfa- és gamma-spektrometria mérési eredményei.....	92
A levegőszűrőről elkülönített részecskék radioanalitikai vizsgálatának eredményei.....	92
A csernobili talajmintából elkülönített részecskék radioanalitikai vizsgálatának eredményei.....	94
A colomboi monazit homokból elkülönített részecskék radioanalitikai vizsgálatának eredményei.....	95
IV. Összefoglalás.....	97
<u>Irodalomjegyzék</u>	
<u>Melléklet</u>	

I. Bevezetés, célkitűzések

Nukleáris események során (reaktorbaleset, robbantási kísérlet) a kibocsátott radioaktivitás nem elhanyagolható hányada inhomogén eloszlású, anyagi részecskékhez kötött formában fordul elő. Ezek az ún. forró részecskék a kibocsátó forrásra jellemző információkat hordoznak. A forró részecskék terjedése, dozimetriai hatása szempontjából többek között a részecskék radiokémiai, elemi összetétele, mérete, morfológiája is meghatározó.

A szakirodalomban található publikációk nagy része a környezetbe kikerült forró részecskék vizsgálatával, jellemzésével foglalkozik, habár sok esetben nemcsak környezeti minták aktivitás-eloszlása lehet inhomogén, hanem atomerőművekkel kapcsolatos mintákban is találhatunk forró részecskéket. Az atomerőművi mintákban található forró részecskék tulajdonságai is értékes információkat hordoznak a kibocsátó forrásukról.

A Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem Nukleáris Technikai Intézetében évek óta rendszeresen vizsgálják a paksi atomerőmű fűtőelemeinek állapotát a reaktorokból vett primervíz minták analitikai elemzésével. A hasadási termékek és a transzurán izotópok aktivitáskoncentrációjának a megnövekedése a primerkörben fűtőelem-meghibásodásra utal. A minták analitikai vizsgálata során gamma-, béta- és alfa-spektrometriával, a jód, a cézium, a stroncium és a transzurán izotópok aktivitásának meghatározásával megbecsülhető a hibás fűtőelemek száma, átlagkiégése, a fűtőelem-hibák mérete (makro- vagy mikrohibás fűtőelem van-e jelen).

A makrohibás fűtőelemekből nemcsak az illékony hasadási termékek kerülnek ki a hűtőközegbe, hanem mikroméretű fűtőelem-fragmentumok is. Ezen fűtőelemrészecskék megtalálásával, vizsgálatával kimutatható a makrohibás fűtőelem jelenléte a reaktorban. A primerköri részecskék jellemzésével, mikroanalitikai vizsgálatával lehetőség nyílik egyszerre több hibás fűtőelem vizsgálatára, azonosítására. Az egyedi részecskék izotóp-összetételéből, a nuklidok aktivitáсарányából a meghibásodott fűtőelem fizikai jellemzőire (pl.: kiégésre) lehet következtetni, ami a későbbiekben fontos a hibás fűtőelem zónán belüli azonosítása szempontjából.

A sérült fűtőelemek vizsgálatára nemcsak a normálüzemi körülmények között van szükség. 2003. áprilisában a paksi atomerőmű 2. blokkjánál az INES skála szerinti 3. fokozatú, súlyos üzemzavar történt. Az üzemzavar fűtőelem tisztítási művelet során következett be, melynek következtében kb. 800m³ víz szennyeződött. A tisztítási eljárás során a konstrukciós hiba miatt bekövetkező elégtelen hűtés, valamint az azt követő hősokek miatt sérültek meg a fűtőelemkötegek, elszennyezve ezzel a 1.sz. akna és a vele egybenyitott pihentető medence valamint a 2. blokk reaktorának vizét. A sérült fűtőelemekből a gáznemű és illékony hasadási termékek mellett (pl.: ⁸⁵Kr, ¹³¹I, Cs izotópok), nem illékony hasadási termékek (pl.: ¹⁴¹Ce, ¹⁴⁴Ce, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰La), valamint urán és transzurán izotópok is kikerültek a hűtőközegbe. A kikerült aktivitás egy része oldott, másik része részecske formában jutott ki a hűtőközegbe.

A PhD munkám célja olyan összetett mikro- és radioanalitikai eljárásokat tartalmazó módszer kidolgozása volt, mely elsősorban a paksi atomerőmű reaktorainak hűtővizében található forró részecskék (primerköri részecskék) minél sokoldalúbb vizsgálatára alkalmas.

A módszerrel azonosítani kívántam a primerkörben található nagyaktivitású részecskéket, hogy a részecskék elkülönítése után az egyedi részecskék, részecskehalmazok morfológiáját, elemi- és radiokémiai összetételét vizsgálhassam. A radiokémiai vizsgálatoknak, a részecskék alfa-spektrometriás elemzésének különösen nagy szerepet szántam munkám során, mivel a részecskékben található transzurán izotópok arányának mérésével kívántam meghatározni az egyedi részecskék kiégését. A normálüzemi (leállási) primerköri részecskék vizsgálatával fő célom a zónában esetlegesen jelenlevő hibás fűtőelemek vizsgálata volt.

Célom volt még továbbá azt is bemutatni, hogy az általam kidolgozott összetett eljárás alkalmas lehet más forrásból kikerült (környezeti mintákban jelenlevő) forró részecskék tanulmányozására is, ezért lehetőség szerint környezeti minták vizsgálatára is sort akartam keríteni doktori munkám során.

A 2003. áprilisi üzemzavar miatt, a kidolgozott részecskeelemzési eljárást nemcsak környezeti mintákban található forró részecskék vizsgálatára adaptálhattam, hanem az üzemzavar következtében kikerült részecskék vizsgálatát is elvégeztem. Az üzemzavari részecskék jellemzésével, kiégésük becslésével a tisztítótartályban bekövetkezett fűtőelem-sérülésről kívántam információkat gyűjteni.

II. Irodalmi összefoglalás

1. Környezeti mintákban levő forró részecskék

1.1. A részecskék csoportosítása tulajdonságaik alapján

A forró részecskéket sokféle tulajdonságuk alapján csoportosíthatjuk: kibocsátó forrásuk (azaz eredetük), méretük, alakjuk, aktivitásuk, radiokémiai vagy elemösszetételük stb. szerint. Az 1950-1960-as években általában csak a részecskék alakjának, méretének, a részecskék adott mintában levő mennyiségének ill. néhány esetben egy-egy részecske teljes aktivitásának meghatározására volt mód. A technika fejlődése azonban egyre inkább lehetővé tette, hogy a részecskék fizikai tulajdonságait, kémiai összetételét jobban megismerhessük. A részecskék különféle tulajdonságai mind meghatározóak a részecskék terjedése, kiülepedése és potenciális egészségkárosító hatásuk szempontjából.

A forró részecskék főbb jellemzői a következők: (Vajda, 2001)

- A részecskék mérete, alakja, kristályszerkezete, morfológiája
- A részecskék radionuklid-összetétele, aktivitása
- A részecskék elemösszetétele
- Fizikai és kémiai tulajdonságai, kémiai kötések, oxidációs állapot

A részecskéket méretük alapján eltérően csoportosítják. Salbu (Salbu, 2001) rendszerezése szerint radioaktív részecskék azok a radioaktív atomokból álló csoportok (aggregátumok), melyek mérete meghaladja a $0,45\mu\text{m}$ -t, míg a milliméteresnél nagyobb részecskéket a fragmentumok közé sorolja be. Azok a kisméretű részecskék, melyek mérete 1 nm - $0,45\mu\text{m}$ közé esik, radioaktív aeroszolok (levegőminták esetében) ill. kolloidok vagy pszeudokolloidok (víz, talaj és üledékminták esetén). Az 1 nm -nél kisebb részecskék pedig kismolekulatömegű részecskék (LMM- low molecular mass). (Salbu, 2001)

1.2. A forró részecskék terjedése

A forró részecskék a környezetbe elsősorban légköri emisszióval vagy folyadékkibocsátással kerülhetnek ki. A szakirodalomban többnyire a levegőben való terjedésről léteznek tanulmányok, a légköri terjedést sok esetben számítógépes terjedési modellekkel írják le.

Az atmoszférikus kikerülést követően a részecskék kiülepednek és rövid ill. hosszú távú hatások lehet az ökológiai rendszerekre nézve. A direkt hatások közé sorolható a részecskék belégzése, valamint a felszín szennyeződésével adódó bórdozis, míg hosszútávon a részecskékhez kötődő radionuklidok ökológiai rendszerekben történő terjedésével kell számolni.

A részecskék terjedésében meghatározó a szerepe azok méretének. A nagyméretű, a kisméretű részecskék és a gázformájú anyagok egymástól elkülönülve terjednek a környezetben. A nagyméretű részecskék (melyek aerodinamikai átmérője nagyobb, mint $20\mu\text{m}$) elhagyják az aeroszoláramot és kiülepednek. A nagyméretű részecskék terjedésében nagy szerepe van a turbulens áramlásoknak is a kiülepedés mellett. (A $200\mu\text{m}$ -es átmérő felett a turbulens áramlások hatása már elhanyagolható.)

A kisméretű részecskék (melyek átmérője kisebb, mint $20\mu\text{m}$) esetében a turbulens kiülepedés még inkább meghatározó kiülepedési mechanizmus (Pöllänen, 2002), (Garland, 1991). A terjedésében az időjárásnak is jelentős szerepe van, mind a kiülepedés, mind a talaj-növény rendszerben történő terjedés szempontjából.

1.3. Tulajdonságaikkal, terjedésükkel kapcsolatos vizsgálatok

Miután a kísérleti atomrobbantások során kikerült részecskéket, sikerült izolálni, azokat elsőként alakjuk, méretük, színük szerint csoportosították.

Az 1960-as évek elején például Japánban végeztek vizsgálatokat a forró részecskékkel, mivel a volt Szovjetunió kísérleti atomrobbantásaiból származó részecskék eljutottak Japán egyes területeire. A nagyaktivitású részecskéket a nem radioaktív porrészeketől GM csővel választották el, majd egy körülményes eljárással az aktív részekből optikai mikroszkópos vizsgálatokhoz készítettek mintákat. Ezt követően a mikroszkópos vizsgálatok alapján megállapították a különböző mintavételi helyekről származó (főként levegőszűrőről vett) részecskék átmérőjét, alakját, színét. Meghatározták a részecskék teljes béta aktivitását is. (Mamuro, 1962)

Az 1970-es évek elején a kínai fegyverkísérletek kihullásának részecskéit vizsgálták. Arkansasban egy különösen nagy méretű, $34\mu\text{m}$ -es részecskét sikerült azonosítani radiográfias felvétel alapján. Az óriási méretű részecskében néhány izotóp mennyiségét is meghatározták a szükséges radiokémiai eljárások segítségével. Meghatározták, hogy a különböző méretű részecskék mikor hullottak ki a robbantások után, mekkora a méretük, s mely légköri rétegig juthattak fel a robbantás során. (Moore, 1973)

Az 1986-os csernobili atomerőmű-balesetet követő kihullás részecskéinek vizsgálatára már jóval többféle lehetőség volt. A részecskék elkülönítését általában ekkor is radiográfias felvételek, és GM csöves mérések alapján végezték. A nyomdetektorok megjelenésével lehetővé vált az egyes részek összalfa aktivitásának meghatározása a nyomképek alapján. Magyarországon, Veszprémben például Balaton körüli növény- és vízminták alfaaktivitását határozták meg CR-39 nyomdetektorral (Kocsis, 1991). Budapesten gyűjtött csernobili részecskékben gamma-spektrometriás mérésekkel meghatározták a részecskékben található gammasugárzó izotópok aktivitását (^{95}Nb , ^{95}Zr , ^{103}Ru , ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{144}Ce). A részecskék szerkezetét, méretét pásztázó elektronmikroszkóppal vizsgálták meg. (Balásházy, 1988)

Napjainkban a legtöbb publikáció a grönlandon 1968-ban lezuhant bombázóból kikerült (thulei) forró részecskék (Eriksson, 2002), (Eriksson, 2004) ill. a szegényített urán tartalmú kozsovói részecskék vizsgálatával kapcsolatos (Danesi, 2003).

1.4. Forró részecskék dozimetriai hatása, dózisbecslések

Az inkorporált illetve testfelszínen megtapadó forró részecskék, fűtőelem-fragmentumok leginkább a kibocsátott béta- és alfa-sugárzásuk miatt jelenthetnek egészségügyi kockázatot. Az egyedi forró részecskék okozta dózisok sok esetben mások, mint az ugyanekkora aktivitással rendelkező nagyobb méretű, homogén források okozta dózisok. Az 1 mm-nél kisebb átmérőjű radioaktív részecskék bőrön való lerakódásának kockázatát az irodalomban sok helyen „forró részecske problémának” („hot particle problem”) is nevezik. (Charles, 1991) A forró részecskék dozimetriai hatásának vizsgálatok többnyire a bőrdózis meghatározásával ill. a tüdődózis számításával foglalkoznak. Meg kell jegyezni, hogy a forró részecskék dozimetriájával kapcsolatos irodalmak sok esetben pontatlanok, például nem különítik el egyértelműen a determinisztikus és a sztochasztikus korlátokat, valamint a dózisok meghatározása, mérése is sok nyitott kérdést tartalmaz. (Mivel dolgozatomban témája nem a forró részecskék dozimetriai hatásának vizsgálata, így e problémák feloldása nem feladatom. Mindemellett a részecskék dozimetriai hatásáról is érdemes ejteni néhány szót, mivel a dolgozatomban szereplő eredmények dózisbecslés-számítások bemenő adatai is lehetnek.)

A nukleáris létesítményekben dolgozóknak megvan az esélyük arra, hogy üzemi körülmények között, például a primerkör karbantartása, javítása, leszerelése valamint a fűtőelemek kezelése során forró részecskékkel is szennyeződjenek a bőrükön. (Bakali, 2001) Az atomerőművekben nemcsak a kikerülő fűtőelem-fragmentumok jelentenek kockázatot, hanem korróziós termékeket tartalmazó forró részecskék is. A kozdoluji atomerőműben egy kísérleti program keretében módszert dolgoztak ki a forró részecskék monitorozására, valamint összetételük meghatározására. A reaktor területén hasadási termék tartalmú fűtőelem-fragmentumokat ill. korróziós termék tartalmú forró részecskéket találtak. A részecskék gamma- és béta-spektrometriás elemzése mellett azok dozimetriai hatásával is foglalkoztak. (Manjukov, 1994)

A forró részecskék kockázata fontos a környezetbe kikerült részecskeformájú szennyeződés esetében a lakosság szempontjából is (csernobili kibocsátás, nukleáris fegyverkísérletek).

A forró részecskék kiváltotta bőrdózisok meghatározása bonyolult probléma, ugyanis a forró részecskék esetére meghatározott dóziskorlátok eltérnek a bőr általános besugárzásakor használatos korlátoktól. Ezekben az esetekben ugyanis a bőrnek csak egy nagyon kis részét éri a sugárzás a forró részecskék kis mérete miatt és a bőr károsodása a kibocsátott bétaenergia függvénye. A nagy és a közepes bétaenergiák esetén (nagyobb, mint 0,9 MeV) a bőr sérülése akut dermális fekélyesedés (acute dermal ulceration), míg kis bétaenergiák esetén akut epidermális szövetelhalás (acute epidermal necrosis). (Hopewell, 2000)

Az NCRP (1999) összehasonlítása szerint a homogén röntgenbesugárzásakor az 5 Gy bőrdózis csak átmeneti bőrpírt (transient erythema) okoz, míg 5-10 Gy –es pontforrás dózisa (1 cm²-es területre átlagolva, 70 μm mélyen mérve) 50%-os valószínűséggel okoz akut dermális fekélyesedést vagy akut epidermális szövetelhalást. Az NCRP ajánlása a bőrön levő forró részecskék okozta determinisztikus károsodás elkerülésére vonatkozik és a radioaktív részecskéből kibocsátott béta részecskék időintegrálján alapul. A korlát szerint a bőrre jutó béta részecskék száma nem haladhatja meg a 10¹⁰-t. Ez az eredmény besugárzott fűtőelemrészecskék bétaemisszióján alapul (és kb. az 5 Gy –es bőrdózisnak felel meg 1 cm²-es területre átlagolva, 70 μm mélyen mérve). Az NCRP ajánlásai tízszer akkora, mint az ICRP ajánlásai a dóziskorlátokra. (Pöllänen, 2002), (Charles, 1991) A két korlátozás eltérései, habár ezt a szakirodalom nem tárgyalják egyértelműen, abból adódhatnak, hogy az NCRP ajánlásai a determinisztikus, míg az ICRP ajánlásai a sztochasztikus hatások elkerülésére vonatkoznak.

A forró részecskék bőrdózisának számításakor általában csak a béta és a gamma-sugárzás hatását veszik figyelembe. A dózisbecslésekhez különféle programokat használnak. Ezek Monte-Carlo módszerrel, point-kernel módszerrel alapulnak. Vannak modellek, melyek az önabszorpciót is figyelembe veszik. (Pöllänen, 1997), (Pöllänen, 1995), (Pöllänen (3), 1997). A legtöbb számítást a VARSKIN kóddal végzik. (Bakali, 2001) A bőrdózis hatásának kísérleti vizsgálata során általában sertések bőrét sugározták be. (Hopewell, 2000) Pöllänen számításokat végzett a csernobili kibocsátásból kikerült forró részecskék okozta dózisokra vonatkozóan ill. végzett hipotetikus számításokat is mások által begyűjtött részecskékre vonatkozóan is. Pöllänen számításai szerint például egy Magyarországon talált, csernobili eredetű (Balásházy, 1988) 680 Bq aktivitású részecske lerakódása a bőrön (az élő bőrsejtek sejtmagjának megfelelő mélységű rétegben (basal cell layer), 1cm²-re átlagolva) 1,8 mGy/h-ás dózisteljesítményt jelent. (Pöllänen, 1997)

A forró részecskék belégzésekor az alfa-, béta ill. gammasugárzó izotópok hatását is figyelembe szokták venni a számításoknál. A csernobili szennyezés magyarországi következményeinek vizsgálatok például

elemezték a forró részecskék belégzésének kockázatát is, a számításokban figyelembe vették a belégzés és a tüdőben való lerakódás kockázatát is. Ennek eredményeként megállapították, hogy a tüdőrák kockázata a forró részecskék béta és gamma sugárzásából adódóan nem nagyobb, mint 10^{-10} személyenként Budapesten. (Balásházy, 1988) (A számítások az alfasugárzó izotópok belégzésének kockázatával sajnos nem foglalkoztak.)

1.5 A részecskék csoportosítása keletkezésük, kibocsátási helyük alapján

A részecskék tulajdonságait nagyban befolyásolja, hogy hol, milyen körülmények között keletkeztek, így összetételükből, a bennük található izotópok arányából következtetni lehet az őket kibocsátó forrás jellemzőire is. A részecskék csoportosításának egy másik módja, ha nem tulajdonságaik, hanem a kibocsátási forrás alapján osztályozzuk őket.

Az aktinidák jelentős hányada magas hőmérsékleten lejátszódó nukleáris események során került ki a környezetbe, nukleáris fegyverkísérletek során vagy a csernobili balesetkor, azonban radioaktív kibocsátások történtek alacsony hőmérsékleten is, s ekkor is került ki részecske formában aktivitás. Ilyen események voltak például a nukleáris telepekről való szivárgások (Sellafield, La Hague), melyek a tengeri üledék radioaktív (sok esetben inhomogén eloszlású) szennyeződését okozták.

Az aktinidatartalmú részecskék a fűtőelemmátrix szétroncsolódásával (robbanás, tűz, stb. miatt), klaszterek (csoportok) kialakulásával, kondenzációs folyamatok során vagy a kibocsátás és diszperzió alatt a rendelkezésre álló anyagokkal való kölcsönhatással jöhetnek létre. A nukleáris létesítményekből történő normál üzemi kibocsátások oka az effluensek nem elég hatásos megtisztítása ill. a kibocsátott levegő nem megfelelő szűrése. A kibocsátó forrás jellemzőire (például kiegészítésre) utalhatnak a mátrixban levő aktinidák, lantanidák aktivitás-koncentrációi és aktivitás arányaik, míg a kibocsátás körülményei befolyásolhatják az illékony elemek aktivitás-koncentrációit (^{137}Cs , ^{90}Sr) vagy a részecskék egyes tulajdonságait (mikro-eloszlás, kristályszerkezet, a mátrix elemek oxidációs állapota, stb.). (Salbu, 2001)

A részecskék eszerint alapvetően három csoportra oszthatók: a nukleáris fegyverkísérletekből, a csernobili balesetből és az egyéb forrásokból származó részecskékre.

1.5.1. Csernobili eredetű részecskék

A csernobili részecskéket összetételük alapján két fő típusra osztják általában. Megkülönböztetnek egykomponensű (vagy ún. ruténium) részecskéket ill. fűtőelem-fragmentumokat: (Vajda, 2001), (Kasparov 1995)

- Az egykomponensű részecskék - habár nem kizárólag egyfajta elemből állnak - aktivitásának nagy része a ^{103}Ru és ^{106}Ru izotóptól származik. Elnevezésük akkor alakult ki, amikor a részecskéket még csak gamma-spektrometriával vizsgálták, de a későbbi elemanalitikai vizsgálatok során kiderült, hogy a Ru-részecskék más aktív és inaktív összetevőket is tartalmaznak a Ru izotópokon kívül. A részecskékre jellemző sorozat, hogy nem, vagy csak nagyon kevés uránt tartalmaznak, ellentétben a másik csoportba sorolható részecskékkal. A fő összetevők a Ru mellett a Mo, Fe, Tc, Ni, Pd, Rh (a fehér zárványok).
- A fűtőelem-fragmentumok jellemzője, hogy legnagyobb mértékben hasadási termékeket tartalmaznak az urándioxid mellett. A részecskékből kevés az illékony elem. A részecskék csernobili eredete a részecskék összetétele és a balesetet szenvedett reaktor izotópleltára között talált összefüggések alapján mutatható ki (Dewell, 1988).

Az 1.1. táblázat a csernobili baleset miatt bekövetkezett kibocsátást foglalja össze.

Nuklid	Felezési idő	Kikerült aktivitás EBq	%-a a zóna aktivitásának	Nuklid	Felezési idő	Kikerült aktivitás EBq	%-a a zóna aktivitásának
⁸⁵ Kr	10.73 év	0.033	100	¹³⁴ Cs	2.07 év	0.019	10
⁸⁹ Sr	50.6 nap	0.094	4	¹³⁷ Cs	30.0 év	0.037	13
⁹⁰ Sr	28.5 év	0.0081	4	¹⁴⁰ Ba	12.75 nap	0.28	5.6
⁹⁵ Zr*	64 nap	0.16	3.2	¹⁴¹ Ce	32.5 nap	0.13	2.3
¹⁰³ Ru	39.25 nap	0.14	2.9	¹⁴⁴ Ce	285 nap	0.088	2.8
¹⁰⁶ Ru	1.02 év	0.059	2.9	²³⁹ Np	2.36 nap	0.97	3.2
¹³¹ I	8.04 nap	0.67	20	²³⁸ Pu	87.7 év	0.00003	3
¹³³ Xe	5.24 nap	1.7	100	²³⁹ Pu	24110 év	2.6E-05	3
				²⁴⁰ Pu	6560 év	3.7E-05	3
összesen						4.19	

1.1. táblázat A csernobli atomerőmű-baleset következtében kikerült nuklidok (Choppin, 1996)

* Megjegyzés: A ⁹⁵Zr nemcsak hasadási, hanem aktivációs terméként is keletkezik.

1.5.2. Légtéri nukleáris fegyverkísérletekből származó részecskék

A nukleáris fegyverkísérletekből származó részecskéket általában négy csoportba sorolják, keletkezésük és összetételük alapján: (Vajda, 2001), (Kern, 1963), (Gross, 1959), (Gross (2), 1959)

- Az első csoportba tartozó részecskék létrejöttük a hasadási és aktivációs termékek ill. a bomba anyagának gőze kondenzálódik le. A részecskék mérete általában 1µm-nél nem nagyobb.
- A második csoportba tartozó részecskék a bomba olvadt részei, valamint a felszívott anyagok (talaj, kövek stb.) cseppjeiből keletkeznek. Ezek a részecskék sokféle összetevőt tartalmazhatnak, szilikátokat, vasoxidot, stb.
- A harmadik típusú részecskék a föld anyagából jönnek létre, vagy részben olvadt talajt tartalmaznak. A felszínükre gáz halmazállapotú hasadási termékek ill. kis méretű (az első típusba sorolható) részecskék adszorbeálódnak.
- A negyedik típusba az első három típus keverékeként létrejövő részecskék tartoznak.

Az alábbi 1.2. táblázat a légtéri fegyverkísérletek során kikerült nuklidok mennyiségét mutatja, mely alapján az összes aktivitás mintegy 500-szor nagyobb, mint a csernobili kibocsátás.

Nuklid	Felezési idő	Kikerült aktivitás EBq	Nuklid	Felezési idő	Kikerült aktivitás EBq
³ H	12.33 év	240	¹²⁵ Sb	2.73 év	0.52
¹⁴ C	5730 év	0.22	¹³¹ I	8.04 nap	651
⁵⁴ Mn*	312.2 nap	5.2	¹³⁷ Cs	30.0 év	0.91
⁵⁵ Fe*	2.73 év	2	¹⁴⁰ Ba	12.75 nap	732
⁸⁹ Sr	50.6 nap	91.4	¹⁴¹ Ce	32.5 nap	254
⁹⁰ Sr	28.5 év	0.6	¹⁴⁴ Ce	285 nap	29.6
⁹¹ Y	58.5 nap	116	²³⁹ Pu	24110 év	0.00652
⁹⁵ Zr	64.0 nap	143	²⁴⁰ Pu	6560 év	0.00435
¹⁰³ Ru	39.25 nap	238	²⁴¹ Pu	14.4 év	0.142
¹⁰⁶ Ru	1.02 év	11.8			
Összesen					2516

1.2. táblázat A légtéri fegyverkísérletek során kikerült nuklidok (1946-1989 között) (UNSCEAR, 1993)

* Megjegyzés: A ⁵⁴Mn és a ⁵⁵Fe a bomba anyagának felaktiválódásából származnak.

1.5.3. Egyéb forrásokból származó forró részecskék

A csernobili baleset, valamint a nukleáris fegyverkísérletek mellett még számos olyan nukleáris vagy nukleáris vonatkozású esemény volt, mely során jelentős aktivitás került ki a környezetbe. Sok esetben ezek a szennyezések is tartalmaztak forró részecskéket, bár ezeknek a tulajdonságai, a kibocsátások módja sok esetben nem annyira ismert, mint a csernobili balesetből és a fegyverkísérletekből származó részecskéknél.

Egyéb események ill.nukleáris balesetek, melyek során nagy valószínűséggel részecskeformában is került ki szennyeződés a környezetbe:

- reprocesszáló üzemekkel kapcsolatos kibocsátások (mayak-i , sellafeld-i kibocsátások)
- repülőgép szerencsétlenség következtében történt kibocsátás (thule-i kibocsátás)
- műholdbalesetek (SNAP-9, Cosmos 954)
- radioaktív hulladéktárolóból való kikerülés (Novaja Zemlja, Oroszország)

Az 1.3. táblázatban aktinida-tartalmú részecskék kibocsátási helyei találhatóak, néhány jellemzővel Salbu csoportosítása alapján. (Salbu, 2001)

Kibocsátó forrás megnevezése	Helye	Kibocsátás körülményei	Jellemzők	Ökoszisztéma, amire hatása volt
Nukleáris fegyverkísérletek	Maralinga, Ausztrália	Légköri felszínközeli robbantások, biztonsági kísérletek és	1µm-nél kisebb méretű részektől fragmentumokig, kölcsönhatás a talajjal	Sivatagi terület
	Marshall Island	Légköri felszínközeli robbantások, biztonsági kísérletek és	1µm-nél kisebb részektől a cm-es nagyságig, kölcsönhatás a korallal, eszközökkel	Korallzátony, tenger
	Mururoa, francia csendes-óceáni szigetek	Légköri felszínközeli robbantások, biztonsági kísérletek és	Mikronosnál kisebb részek a cm-es nagyságig, kölcsönhatás a korallal	Sivatagi terület
	Nevada kísérleti terület, USA	Légköri felszínközeli és felszín alatti robbantások	Mikronosnál kisebb részek a cm-es nagyságig, kölcsönhatás a talajjal, eszközökkel	Sivatagi terület
	Szemipalatyinszk, Kazakhsztán	Légköri felszínközeli (kráteres) és felszín alatti robbantások	Kimutatható inhomogenitások a talajban	Sivatagi terület
	Novaya Zemlja, Oroszország	Légköri felszínközeli és víz alatti robbantások	Kimutatható inhomogenitások az üledékekben	Sarkvidéki szárazföld és tenger
Atomerőmű balesetek	Csernobil, Ukrajna	Robbanás, tűz	Redukált uránrészecskék, oxidált uránrészecskék	Szárazföldi és édesvízi rendszerek
	Windscale, Egyesült Királyság	Tűz	Hópiheszerű urán részecskék, általános uránrészecskék	Szárazföldi és tengeri területek
Nukleáris berendezésekkel kapcsolatos balesetek	Kanada/Cosmos	Műhold reaktorának megsemmisülése	Mikronosnál kisebb méretű részektől fragmentumokig	Szárazföldi és édesvízi rendszerek
	Palomares, Spanyolország	Nukleáris robbanóanyag szétszóródása	Plutónium részecskék	Sivatag, tenger
	Thule, Grönland	Nukleáris robbanóanyag szétszóródása	Plutónium részecskék	Sarkvidéki tenger és szárazföld
Hulladéktárolás	Novaya Zemlja Abrosimov, Stepovogo fjord, Oroszország	Elhelyezett hulladék oldódása	⁶⁰ Co részecskék és plutónium felhalmozódás üledékekben	Sarkvidéki tenger és szárazföld
Effluensek	Sellafield, Egyesült Királyság	elfolyás	Részecskék, kolloidok	Tenger
	La Hague, Franciaország	elfolyás	Részecskék, kolloidok	Tenger
	Mayak, Oroszország	elfolyás	Kimutatható inhomogenitások az üledékekben	Édesvízi rendszerek, szárazföld

1.3. táblázat Aktinida-tartalmú részecskék jellemzői (Salbu, 2001)

2. Részecskék vizsgálatára alkalmas módszerek

Nemcsak a forró részecskék fizikai tulajdonságainak megismerése, hanem mind az elemi- és izotóp-összetételük (izotóparányok) meghatározása is fontos.

A fizikai tulajdonságok, alak, méret stb. befolyásolják a részecskék kiüledését, terjedését.

Az elemi összetétel meghatározó a kémiai viselkedés, például oldhatóság szempontjából, s ez által befolyásolja környezetbe kikerült részecskék terjedését is. A részecskék dozimetriai hatása szempontjából is fontos, hogy milyen kémiai formában vannak jelen a környezetben, és milyen kémiai formában kerülhetnek be az emberi szervezetbe.

A részecskék radionuklid összetételének meghatározása nem csak az aktivitásuk, dozimetria hatásuk miatt fontos, hanem a kibocsátó forrás jellemzésekor, keresésekor is hasznos.

A forró részecskék vizsgálatára alkalmazható módszereknek több fajtája ismert, de a mikroanalitikai vizsgálatok számos fajtáját még nem alkalmazták radioaktív részecskék elemzéséhez. (Vajda, 2001). Forró részecskék vizsgálatával kb. az 1950-es évek közepe óta foglalkoznak, mivel jelentős mennyiségű radioaktivitás került ki környezetünkbe a nukleáris kísérleti robbantások során, s a technika fejlődésével egyre több információ szerezhető meg a nagyaktivitású részecskékről.

A forró részecskék vizsgálatára alkalmas módszereket sokféleképp csoportosíthatjuk. Megkülönböztethetők ún. nukleáris analitikai technikák és ún. mikroanalitikai technikák (ezek sok esetben szintén nukleáris vonatkozásúak.). (Pöllänen, 2002) Az alábbi táblázat ezeket a módszereket csoportosítja, megjelölve a területet, ahol a kérdéses módszer alkalmazható a forró részecskék kutatásában.

<i>Nukleáris analitikai technikák és alkalmazási körük</i>	
Autoradiográfia	Részecskék azonosítása, elkülönítése
Nyomdetektoros vizsgálatok	Alfa- és béta-sugárzás kimutatása, teljes alfaaktivitás meghatározása
Digitális valós-idejű képképző rendszerek (bétakamerák, stb.)	Radioaktív részecskék azonosítása, elkülönítése
Gamma-spektrometria	Gammasugárzó izotópok aktivitásának meghatározása
Alfa-spektrometria	Alfasugárzó izotópok aktivitásának meghatározása radiokémiai elválasztási eljárások után
Bétaspektrometria	Bétasugárzó izotópok aktivitásának meghatározása radiokémiai elválasztások után
<i>Mikroanalitikai technikák és alkalmazási körük:</i>	
<i>Nyalábtechnikák:</i>	
Elektronnyalábos technikák (transzmissziós és pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatok, stb.)	Elemösszetétel meghatározása, részecskeszerkezet, méret vizsgálata
Részecske nyalábos technikák (PIXE, stb.)	Elemösszetétel meghatározása, részecskeszerkezet, méret vizsgálata
Röntgenyalábos technikák (μ -XRF, μ -SRXRF stb., TXRF)	Elemösszetétel meghatározása, kémiai kötések vizsgálata
<i>Egyéb mikroanalitikai módszerek:</i>	
Tömegspektrometriás módszerek	Elem- és izotópösszetétel meghatározás
Aktivációs analízis	Multielemanalízis

2.1. táblázat Részecskék vizsgálatra alkalmas módszerek

(PIXE: részecskenyaláb indukálta röntgenemisszió, μ -XRF: mikro-nyalábos röntgenfluoreszcens analízis, μ -SRXRF: mikro-nyalábos szinkrotrongerjesztéses röntgenfluoreszcens analízis, TXRF: totálreflexiós röntgenfluoreszcens analízis)

A módszerek egy része a minták elroncsolásával, feloldásával jár, másik része a minták roncsolásmentes elemzését teszi lehetővé. A különböző módszerekkel különböző típusú minták vizsgálhatók egyszerűen, eltérő érzékenységgel. Néhánnyal csak minőségi elemzésre van lehetőség, míg másokkal a mintákban található izotópok vagy elemek mennyisége, esetenként oxidációs állapota is meghatározható.

Az alábbiakban a radioaktív részecskék vizsgálati lehetőségeit fogom bemutatni. Tárgyalni fogom az autoradiográfias technikákat részletesebben, mivel én is film autoradiográfias módszert alkalmaztam doktori munkám során a forró részecskék elkülönítéséhez. Összehasonlításképp bemutatom a nyomdetektoros módszert ill. néhány digitális képképző rendszert, hogy látható legyen milyen előnyeik, és hátrányaik vannak a film autoradiográfiaival szemben. A részecske elkülönítési módszerek közül megemlítem a mintafelezéses módszert, mivel jól alkalmazható a részecskék helyének megtalálására nagy mennyiségű (pl. talaj, üledék) mintában és szinte szükségszerűen megelőzheti a hagyományos film autoradiográfias vagy digitális autoradiográfias technikákat. Röviden ismertetni fogom a nyalábtechnikákat, mivel napjainkban ezek a legkorszerűbb részecskeelemzési módszerek és a különböző módszerek egymást kiegészítve rendkívül sokrétű információval szolgálnak a részecskékről, bár sok esetben igen költségesek. Az elektronmikroszkópos méréseket részletesebben tárgyalom, mivel kapcsolódnak a részecske elemzéseimhez. Tárgyalni fogom a radioanalitikai módszereket, melyek roncsolásmentes (gamma-spektrometria) esetben a nyalábtechnikákat megelőzve,

roncsolásos esetben (alfa- és béta-spektrometria), azt követően szolgáltatnak információt a minták izotóp összetételéről. A radioanalitikai vizsgálatok részletes elméletére nem térek ki, mivel a BME NTI-nél az alfa-, béta- és gamma-spektrometriás elemzések mindennap használatos módszerek, és így ezek elmélete részletesen megtalálható az alábbi tanulmányokban (Kerkápoly, 2001), (BME NTI, 2003). Doktori munkám nagy részét a forró részecskék radioanalitikai vizsgálatait teszik ki, ezek részletei (az alfa-spektrometriát megelőző elválasztási eljárások, melyek esetenként a minták típusától függően eltérő lehet) a 8.4.1 fejezetben található meg.

A módszerek ismertetése mellett kitérek a forró részecske vizsgálatokra, melyeket az ismertetett technikákkal kiviteleztek. Kiemelném, hogy a példák szinte mind kivétel nélkül környezeti forró részecskék elemzését mutatják be, mivel a szakirodalomban alig található publikációk atomerőműi (környezetbe ki nem került) forró részecskék vizsgálatáról. A doktori munkámmal kapcsolatosan különösen érdekes, hogy atomerőművek hűtőközegében található fűtőelem-részecskék elemzéséről egyáltalán nincsenek elérhető adatok.

2.1. Autoradiográfia

2.1.1. Az autoradiográfia alapja

Az autoradiográfia az egyik legrégebbi módszer, amit radioaktív sugárzások detektálására használnak. Működési elve igen egyszerű és a radioaktív minta roncsolásmentes vizsgálatát teszi lehetővé.

Az autoradiográfia alapja, hogy a különböző fényképezési filmek ill. speciálisan autoradiográfias vizsgálatokra kifejlesztett filmek érzékenyek az ionizáló sugárzásokra, azaz az ionizáló sugárzás hatására megfeketednek. A filmek felületi rétegében zselatinba ágyazott ezüst-bromid szemcsék találhatóak, melyekben a sugárzás hatására az ezüst-bromid ezüstre és brómra szakad szét. Az exponálást követően a filmet előhívva, majd fixálva, a film zselatinos rétegében maradó elemi ezüst látható a film megfeketedett részein. A feketedés mértéke többnyire arányos a sugárzás intenzitásával, de bizonyos energiatartományokban a feketedés energiafüggő (ez különösen a filmek dozimetria alkalmazásánál nem kívánatos), valamint függ a sugárzás fajtájától is. Az autoradiográfias vizsgálatokhoz, dózismérőkhöz sokféle filmet kifejlesztettek már, amelyek különböző adalékanyagokat (pl. fluoreszcens anyagot) is tartalmaznak emulziójukban, hogy a feketedés „energiafüggetlenné” váljon (Virágh, 1990).

2.1.2. Az autoradiográfia alkalmazhatósági köre

Az autoradiográfiát korábban igen elterjedten használták az iparban (pl.: hegesztési varratok vizsgálatára, különféle anyagszerkezeti vizsgálatokhoz), míg manapság leginkább az orvosi alkalmazása jelentős. Az orvosi, biológiai területen főként nyomjelzéses vizsgálatokhoz használnak autoradiográfiát, általában a ^{14}C , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I , ill. néha a ^3H kimutatása, nyomon követése a cél. Az autoradiográfias vizsgálatokkal a mennyiségi elemzés általában csak egy izotóp jelenléte esetén lehetséges. (<http://laxmi.nuc.ucla.edu:8248>) Ekkor a mérésekhez azonos fajtájú, általában speciálisan az alkalmazási célra kifejlesztett filmet használnak és mindig azonos körülmények között dolgoznak vele, (azonos exponálási, előhívási mód, stb.). Ebben az esetben, mivel a film feketedése arányos a sugárzás intenzitásával és ez egyetlen izotópnak tulajdonítható, megfelelő standard minták segítségével az ismeretlen aktivitások is meghatározhatók. A feketedés mérését korábban fotometriás mérésekkel oldották meg, ma már azonban a filmek sokkal pontosabb kiértékelésére van lehetőség scannerek, CCD kamerák és a megfelelő számítógépes képfeldolgozási eljárások alkalmazásával (Annunziata, 1998). Bizonyos esetekben lehetőség van két izotóp egymás mellett történő mennyiségi meghatározására autoadiográfiával, amennyiben a két izotóp felezési ideje jelentősen eltérő, és így két, egymást követő exponálással határozható meg az aktivitásuk. (<http://laxmi.nuc.ucla.edu:8248>)

Autoradiográfias vizsgálatokat korábban széles körben alkalmaztak a nukleáris technika területén, radioaktív minták aktivitás-eloszlásának meghatározásához (pl.: levegőszűrőn levő aktív részecskék kimutatásához) ill. forró részecskék kimutatásához, elkülönítéséhez (Sisefsky, 1961), (Apokova, 1991). Az elektronmikroszkóp és a különféle XRF berendezések megjelenése előtt ez volt az egyetlen módszer, mellyel a részecskék méretét és elhelyezkedését fel lehetett térképezni. A nukleáris fegyverkísérletek során kikerült radioaktív részecskék autoradiográfias vizsgálata már az 1950-es évek közepe táján elkezdődött. (Sisefsky, 1961)

2.1.3. Autoradiográfias filmek

A fotózáshoz használatos filmek általában alkalmasak autoradiográfias felvételek készítéséhez, bár a külön erre a célra kifejlesztett filmek érzékenysége általában nagyobb a detektálandó sugárzásra. A filmek érzékenységét, felbontóképességét nagyban meghatározza az emulzió típusa ill. az emulzióban levő ezüst-bromid szemcsék mérete.

A filmeket az emulziójuk alapján általában az alábbi csoportokba szokás sorolni:

- optikai film - rendszerint fényképezéshez használják
- röntgensugárzásra érzékeny film
- autoradiográfias film - érzékenységét tekintve hasonló a röntgen érzékeny filmhez

Az autoradiográfias filmekhez készített emulziók igen drágák, így egyszerűbb felvételekhez a röntgen-ill. a fotófilmek is megfelelőek. A röntgenfilmek kis mennyiségben nehezen beszerezhetőek. A röntgenfilmeknek jó a felbontásuk és elég érzékenyek (pl. a Kodak termékek), és általában mindkét oldalukat bevonják emulzióval, míg a fotózáshoz használt filmeknek csak egyik oldala érzékeny. Az optikai filmek hátránya a röntgenfilmekhez képest, hogy valamivel kisebb az érzékenységük az ionizáló sugárzásra, valamint csak egyik oldaluk borított emulzióval, áruk viszont jóval alacsonyabb. (Grafton, 1971)

2.1.4. Felbontóképesség

Az autoradiográfias felvételek felbontóképességét (a felvételen elkülöníthető feketedések távolságát) nagyban meghatározzák a használt filmek, valamint a felvételkészítés alábbi jellemzői:

- az emulzió vastagsága - a vastagabb emulzió nagyobb érzékenységet biztosít, (nagyobb a feketedés/ a sugárzás intenzitásának aránya), de romlik a felbontóképesség
- az ezüsthalogénid szemcsék mérete, amiket az emulzió tartalmaz - a kisebb kristályokkal pontosabban azonosíthatók a minta aktív részei
- az exponálás idejének hossza - az exponálás idejének növekedésével csökken a felbontóképesség
- az emulzió érzékenysége - kevésbé érzékeny emulzióknál hosszabb exponálás szükséges, amivel romlik a felbontás, viszont a nagyobb érzékenység nagyobb szemcseméretet jelent

Az autoradiográfia során a felbontóképességet több tényező befolyásolhatja a film fajtáján kívül, ami nagyrészt a minta típusával (detektálni kívánt sugárzás fajtájával) valamint a felvétel elkészítésével kapcsolatos. (Annunziata, 1998)

A felbontást a fenti tényezőkön kívül nagymértékben befolyásolja:

- a mérendő izotóp fajtája - a kis energiájú sugárzást emittáló izotópok detektálásakor jobb a felbontás, mivel a kibocsátott részecskék rövidebb utat futnak be az emulzióban
- a minta és a film közti távolság - a minta és az emulzió közti távolság növekedésével jelentős mértékben romlik a felbontás
- a minta vastagsága - vastagabb minta esetében egyes részecskék távolabb eshetnek a film emulziós rétegétől, ezért romlik a felbontás, valamint a vastagabb mintákban már az önabszorpció is jelentős lehet, ami az érzékenységet csökkenti

A felbontás szempontjából a felvételkészítésnél figyelembeveendő legfontosabb tényező a minta és a film távolsága. (Annunziata, 1998)

2.1.5. Az autoradiográfias felvétel kiértékelése

Az autoradiográfias felvétel a minta aktivitását, aktivitáseloszlását reprezentálja. Az aktivitás értékének számszerűsítésére a film feketedésének mérésével van lehetőség.

Minden egyes exponálási időhöz tartozik egy aktivitásküszöb, ami már mérhető feketedést okoz a filmen ill. van egy aktivitástartomány, melyen belül az aktivitás arányos a feketedéssel.

A detektálás felső határa az a maximális aktivitás, ami még nem okoz túlexponálást, ill. nem okozza a film teljes megfeketedését az adott exponálási idő mellett. Azt a tartományt, melyen belül fennáll a kapcsolat az aktivitás és a film feketedése közt, lineáris dinamikus tartománynak (linear dynamic range) is nevezik. Az érzékenység és a lineáris dinamikus tartomány nagyságának növelése például fluorográfiával lehetséges (Annunziata, 1998).

2.1.6. Az autoradiográfias felvétel számszerű kiértékelése

A filmek feketedésének számszerűsítésére számos rendszer létezik, ilyenek például a fényvel működő sötétedésmérők (denzitométerek) ill. a lézérfényvel működő sötétedésmérők, a síkgyas scannerek, valamint a különösen drága videó és CCD kamerás rendszerek. A feketedés mérésére minden olyan módszer jól használható, melyek során a filmen átbocsátott fehér fény elnyelődésének mértékét mérik meg, majd a digitalizált jelet digitális képfeldolgozó programok segítségével kiértékelik, számszerűsítik.

Ahhoz, hogy a felvétel alapján az aktivitás értéke is megadható legyen, minden egyes exponálás esetén egy standardet kell alkalmazni. A feketedés mértéke nem kizárólag csak az aktivitástól függ, hanem befolyásolja az exponálási idő, a film kidolgozásának módja és a film fajtája. A standard alkalmazásával számos nem kívánatos befolyásoló tényező hatása kizárható.

A radionuklidok mennyiségi meghatározásakor az alábbi lépésekre/eszközökre mindenképp szükség van a radiográfiás vizsgálat során:

- kalibrált scanner vagy kamera rendszer, a teljes sötétedés felismeréséhez és a teljes fényesség meghatározásához (a kép háttéré, amit alapfátyolnak szoktak nevezni a fényképészetben), így számítógépben tárolt referenciatáblázat segítségével minden egyes pixel szürkessége megadható
- ismert aktivitású standardek használata, a rendszer kalibrálása nyomjelzett standardekkel, valamint az 1 mm^2 -re eső aktivitás megadása a kiértékelő software-nek
- a sötétedés-radioaktivitás függvény ismert aktivitású standardekkel, és ezen eredmények összevetése, vagy lineáris regresszió alkalmazása, a legjobban illeszkedő egyenes egyenletének felírásához, korrelációs együttható megadásához (ha a korrelációs együttható nem nagyobb, mint 0,95, akkor a kalibrációt meg kell ismételni) Egy lehetséges probléma, ami a film nem lineáris válaszáat okozza, az alul- vagy a túlexponálás.
- a kép egyes területeinek elemzése az érdekes területek összegzésével és a sötétedés értékének számszerű hozzárendelésével
- esetenként olyan berendezések használata, melyekhez illesztett kiértékelő szoftver is tartozik, melyek alkalmasak a kvantitatív értékek kiszámítására a film értékes területein, felhasználva a standard aktivitások és a sötétedés közti kapcsolatot

Minden képfeldolgozó berendezés valamilyen szempont szerint optimalizálja az eredményt (pl. a kép zajosságának csökkentése), azonban a legtöbb hibát maguk a filmek okozzák, éppen ezért ezeknél az optimalizálási módszereknél fontosabbak azok a módszerek, amelyek magát a felvételt készítést optimalizálják. (Annunziata, 1998)

2.1.7. Forró részecskék teljes béta- ill. teljes alfa-aktivitásának becslése autoradiográfiás képek alapján

A műszeres analitikai módszerek megjelenése előtt az aktív környezeti minták aktivitás-eloszlásának feltérképezésére, a forró részecskék vizsgálatára az egyetlen módszer az autoradiográfia volt. A légköri valamint földfelszín alatti nukleáris fegyverkísérletek során kikerült nagymennyiségű aktivitás - ami sok esetben részecskeformában jelent meg - feltérképezése a környezeti mintákban nagyrészt autoradiográfiás vizsgálatokkal valósult meg.

Bizonyos feltételezésekkel élve az autoradiográfiás felvételek alapján becsülték meg az egyes részecskék és a minták teljes bétaaktivitását. A számításoknál feltételezték, hogy a fegyverkísérletek során kikerült részecskék alfasugárzó izotópokat nem tartalmaznak, valamint a gammasugárzás járuléka a film megfeketedésében elhanyagolható a béta-sugárzás hatásához képest. Elhanyagolták az önabszorpció hatását, valamint a sugárzás gyengülését is a fotoemulzióval való áthaladás során. Ezen feltételezések mellett, a feketedés nagyságát meghatározva optikai mikroszkóppal, a film sötétedése és az expozíciós idő ismeretében becsülték meg a részek teljes béta aktivitását. A felvételek készítéséhez általában erősítőernyő nélküli röntgenfilmet használtak. (Sisefsky, 1961)

Napjainkban is alkalmaznak még film autoradiográfiát, azonban egyre elterjedtebbek a digitális képfeldolgozó rendszerek ill. a digitális autoradiográfiás módszerek.

Direkt autoradiográfiához kifejlesztett filmmel (KODAK BIOMAX MR film) is kidolgoztak már forró részecskék vizsgálatára alkalmas autoradiográfiás módszert. A standardekkel történő kalibráció után lehetőség van a filmmel kvantitatív elemzésekre, bétaaktivitás meghatározásra is, azonban ez a módszer is bonyolulttá válik, amennyiben a részecske nemcsak egyféle radioaktív izotópot tartalmaz. A film esetében az aktivitás kapcsolatban van a feketedés mértékével. A kidolgozott módszerrel csernobili részecskéket azonosítottak, elemeztek. (Pöllänen, 1996)

2.1.8. Optimalizálási technikák

A jobb képminőség, nagyobb lineáris tartomány elérésének érdekében a radiográfiás vizsgálatoknál erősítőernyőt (intensifying screen) ill. fluorográfiát szoktak alkalmazni.

Az erősítőernyő vékony lap, amit a film mögé helyeznek az exponáló kazettába, ami felerősíti a radioaktív mintából érkező sugárzás hatását. A mintából kijövő sugárzás keresztül halad a filmen és eléri az erősítőernyőt, minek hatására az ernyőből fotonok lépnek ki, amik szintén keresztülhaladnak a filmen. A kisenergiájú sugárzás (^{14}C , ^3H , ^{35}S) általában nem jut át a filmen, így az erősítőernyő csak nagyobb energiájú béta-sugárzó (^{32}P) ill. gammasugárzó izotópok (^{125}I) detektálásakor használható.

Amíg a módszer előnyének mondható a nagyobb érzékenység és a nagyobb linearitási tartomány, addig a módszer hátránya, hogy hibát visz a mennyiségi meghatározásba. A legújabb erősítőket a Kodak cég fejlesztette ki, BIOMAX néven, manapság ez a legelterjedtebb az orvosi, biológiai alkalmazások tekintetében, ami mind kis-, mind nagyenergiájú izotópokhoz használható. (Annunziata, 1998), (www.kodak.com- (Autoradiography Film Tips))

A fluorográfia használatával olyan kis energiájú izotópok detektálása válik lehetővé, mint a ^{14}C vagy a ^3H . A fluorográfia során a bétarészecskék kis energiáját egy szerves szcintillátor anyag segítségével átalakítják látható fényvé, s az exponálás nagyrészt már ezzel a látható fényel történik. (Szerves szcintillátorként általában POP-t használnak.) Ezzel a módszerrel az érzékenység 10-100-szorosára növekedhet a ^3H detektálása esetén és 5-10-szeresére a ^{14}C mérésekor, aminek nagy jelentősége lehet például különféle biokémiai vizsgálatokban (pl. a fehérjék kutatásában). (Annunziata, 1998), (http://pingu.salk.edu/~sefton/Hyper_protocols/ARG.html)

A módszer előnye, hogy megnöveli az érzékenységet és a felbontást, azonban a mennyiségi meghatározásnál hasonló hibák lépnek fel, mint az erősítőernyő használatakor.

2.1.9. Az autoradiográfia előnyei

A radionuklidokkal kapcsolatos képalkotási módszerek közül (2.3 fejezet) a film autoradiográfia nyújtja a legjobb felbontást, lehetővé téve ezzel a nyomjelzett anyag helyének pontos meghatározását, habár a módszer digitalizálásával a felbontás valamelyest csökken, mivel a digitalizáló eszközök felbontása általában kisebb, mint a filmeké. A nagy felbontóképesség különösen a kisenergiájú ^3H detektálásánál fontos. A ^{32}P esetében a módszer alkalmazhatósága korlátozott, a béta sugárzás nagy energiája miatt. A filmmel készített felvétel maradandó, idővel nem elváltozó, kézzelfogható „dokumentumot” szolgáltat. Habár a különféle típusú, kiszerezésű, különböző felszereltséggel rendelkező filmek ára igen eltérő, mégis ez a legolcsóbb módszer, amivel radionuklidokról készíthetünk felvételt. Dacára, hogy az előhíváshoz vegyszerekre, sötét szobára van szükség, mégis az autoradiográfias vizsgálatok igényelik a legkisebb kezdeti anyagi beruházást. Persze ez nem vonatkozik a kvantitatív meghatározásokhoz szükséges felszerelésre, bár sok esetben az izotóp képalkotással történő mennyiségi meghatározása még így is olcsóbb, mint más alkalmazható műszeres méréstechnika. (Annunziata, 1998)

2.1.10. Az autoradiográfia hátrányai, nehézségei

Bár az elérhető detektálási határ igen alacsony, a kis aktivitások (környezeti mintákban levő aktivitás) detektálásához hosszú (több hetes) exponálási időre van szükség. (A digitális képfeldolgozó rendszerek esetében ennél jelentősen kevesebb, néhány perces vagy órás mérési idők is elegendők). A fényképezési filmek igen érzékenyek a fényfotonokra, de nem túl érzékenyek az ionizáló sugárzásokra. Az alfasugárzás detektálása is nehézkes lehet sok esetben, ha a mintában bekövetkező önabszorpció jelentős. Ez az autoradiográfia érzékenységét csökkentheti, valamint a vastag minta a felbontást is rontja.

Az autoradiográfiának egy másik korlátja a lineáris dinamika tartomány, mely segítségével a radionuklidok mennyisége számszerűsíthető. A film válaszfüggvényének van egy minimuma és egy küszöbértéke, melynél alacsonyabb aktivitás esetén nem ad választ, és rendelkezik egy telítési ponttal is, amely után nem feketedik meg erősebben a további gamma- és bétasugárzás hatására. (Az általam tesztelt film feketedés-exponálási idő függvényét a 7.3.5 fejezet tartalmazza.)

Az expozíciós idő előzetes megbecslése egyes mintáknál bonyolult. Habár a mintában levő összaktivitás más módszerrel megbecsülhető, azt azonban nehéz meghatározni, hogy mekkora exponálási időre van szükség ahhoz, hogy a minta minden egyes részén a kapott információ lineáris legyen. Egyes mintáknál két expozícióra is szükség lehet, hogy elérjük ezt. Standardekert kell használni minden egyes exponáláshoz, hogy meghatározhassuk azt az aktivitást, aminél a filmnek lineáris válasza van. A film autoradiográfia analóg reprezentációt ad az aktivitásról, de a kvantitatív kiértékeléshez nem elég a vizuális vizsgálat, scannert, sötétedésmérőt, CCD kamerát kell használni. A film exponálása, előhívása, többszöri exponálása (a lineáris tartomány eléréséhez), scannelése, digitalizálása órákba, napokba telhet a vizsgálat során. (Annunziata, 1998) A radionuklid mennyiségi meghatározására általában csak abban az esetben van lehetőség, ha csak egy izotóp van jelen a mintában ill. néhány esetben két izotóp mennyisége is meghatározható egymás mellett, ha azok felezési ideje jelentősen eltérő. (<http://laxmi.nuc.ucla.edu:8248>)

2.2. Nyomdetektoros vizsgálatok

A nyomdetektorok az 1970-es évek közepén jelentek meg (Fleshier, 1975), nehéz töltött részecskék ill. neutronsugárzás detektálására alkalmasak. Működési elvük igen egyszerű. A nehéz ionizáló részecskék bizonyos anyagokban (pl.: cellulóz-nitrátban, egyes kristályokban) jól definiálható nyomot hagynak maguk után, melyek maradás után láthatóvá válnak. Az egységnyi felületen található nyomok és a nyomdetektort ért dózis között kapcsolat van. A nyomok jellemzőinek (pl.: átmérő) meghatározásával alfa-spektrometriára is lehetőség van. A kiértékelés korábban optikai mikroszkóppal történt, ill. napjainkban automatikus kiértékelő berendezésekkel lehetséges. (Virágh, 1991), (Nagy, 1997)

A nyomdetektoroknak a személyi dozimetria mellett szerepük van a forró részecskék ill. környezeti minták vizsgálatában is. Az SSNTD-vel (szilárdtest nyomdetektorokkal- solid-state nuclear track detector) a környezeti minták aktivitáseloszlását, a részecskék eloszlását lehet feltérképezni, hasonlóan a radiográfiához.

Az autoradiográfiával szemben nyomdetektoros módszerekkel lehetőség van a minták alfaaktivitásának a meghatározására is, s korlátozott módon lehetőség van alfa-spektrometriára is, a részecskék elkülönítésére azonban mindkét módszer alkalmas. Az autoradiográfia előnye a nyomdetektorokkal szemben, hogy mind a képek elkészítése, mind a kiértékelése egyszerűbb. Autoradiográfiánál és nyomdetektoroknál az exponálási idők azonos nagyságrendűek, azonban a nyomdetektor filmek maratása általában külön berendezésben történik, magas hőmérsékleten, hosszú időt vesz igénybe (70°C -on, 6h). A nyomok számlálása mikroszkóppal valósul meg ill. optikai mikroszkópon alapuló nagyfelbontású kamerarendszert igényel. (Pálfalvi, 1988) A módszer relatíve költséges lehet a digitalizáló rendszerek ára miatt, s sok esetben felesleges lehet, ha csak a részecskék azonosítása, eloszlásának feltérképezése a cél.

A nyomdetektoros vizsgálatoknak a csernobili balesetet követően volt nagy szerepük, mind kvalitatív, mind kvantitatív vizsgálatokra használták őket. Magyarországon balatoni és győri víz- és növényminták alfaaktivitását határozták meg CR-39 típusú nyomdetektorral és megbecsülték a minták uránkoncentrációját. (Kocsis, 1991) A csernobili balesetet követően nyomdetektorokat alfa-spektrometriás célokra is sok esetben használtak környezeti minták vizsgálatakor. Budapesten nyomdetektorokkal levegőszűrőkön talált forró részecskék alfasugárzó izotópösszetételét határozták meg. (Pálfalvi, 1991) Ukrajnában és Oroszországban is sokszor alkalmaztak nyomdetektorokat a minták alfaaktivitásának meghatározásához. (Gromov, 1993)

A nyomdetektoros méréseket napjainkban, sok esetben kiegészítő módszerként alkalmazzák további radioanalitikai (pl.: alfa-spektrometriás), nyomelemanalitikai vizsgálatok előtt, hasonlóan az autoradiográfiához. Marshall-szigeteki plutóniummal szennyezett talajminták inhomogenitását vizsgálták például elsőként CR-39-es plasztik nyomdetektorral, s a kapott eredményeket a minták alfa-spektrometriás mérési eredményeivel vetették össze. Míg a hagyományos alfa-spektrometriás módszereknél az elválasztási eljárás során a szilárd mintákat feloldják, s ezzel az egyedi részecskékre vonatkozó adatokat (méret, részecskeeloszlás) elveszítik, addig a nyomdetektoros technikánál nincs szükség a minták feloldására. Éppen ezért a két módszer egymást kiegészítően alkalmazható. Megfelelő kalibráció után elvileg a nyomdetektoros technikával is lehet kvantitatív eredményeket kapni, azonban a gyakorlatban (például zajos kép esetén, nagy háttérsugárzás mellett) a nyomok kiértékelése bonyolult. A nyomdetektor alkalmazásának nagy előnye elsősorban nem a kvantitatív alfa-mérésekben van, hanem a forró részecskék eloszlásának, mikro-homogenitásának és részecskeméret-eloszlásának meghatározásában. (Simon, 1995)

A nyomdetektoros technikák, a nyomok kiértékelésének automatizálását is megvalósították már plasztik (CR-39, pl. TASTRAK) detektorokkal. Ezekkel lehetőség van a forró részecske alfa-aktivitásának, fizikai méretének és a részecske-plasztik detektor közti távolság meghatározására. A TASTRAK detektoros részecske elemzési módszer kidolgozása, demonstrálása is csernobili forró részecskék elemzésével történt. (Bondarenko, 1996)

2.3. Részecskék elkülönítése digitális képfeldolgozó rendszerek alkalmazásával

Napjainkban már lehetőség van különféle digitális képfeldolgozó rendszerekkel is a részecskék izolálására. A képfeldolgozó rendszerek különféle detektorokat (detektorsorokat, pontdetektorokat) tartalmaznak, melyekkel a sugárzás, sugárforrások helyének detektálása válik lehetővé. A rendszerek valós időben adnak képet a mintán levő sugárzás eloszlásáról. A képfeldolgozó rendszerek pontos felépítése, működése általában nem ismert, mivel ezek kereskedelmi titoknak minősülnek.

A vizsgálatok szerint a valós idejű digitális képfeldolgozó rendszereknek négy előnye van a forró részecskék elkülönítésekor:

- a módszer gyorsabb, mint a hagyományos autoradiográfia
- egyszerűen meghatározható a részecskék helye
- a kapott jel arányos az energiával, s alkalmas lehet aktivitásbecslésre (legalábbis az alfáéra)
- az eredmények élőidejűek, nem szükséges hosszabb expozíció, mint a CR-39 ill. a film autoradiográfia esetében.

A különféle digitális képfeldolgozó rendszerek általában biológiai és orvosi alkalmazásoknál elterjedtek, de napjainkban már forró részecskék detektálására is alkalmaznak valós idejű képfeldolgozó berendezéseket.

A thulei baleset következtében kikerült részecskék azonosítását a tengeri üledékmintákból kétféle digitális valós idejű rendszerrel is sikeresen megoldották. (Eriksson, 2002) A thulei részecskék azonosításához egy Si detektoros valós idejű képfeldolgozó rendszert, IDE Bioscope-ot, ill. egy szcintillációs detektorral működő béta-kamerát használtak. (Eriksson, 2002)

Az IDE-Bioscope-al a minta aktivitás eloszlása térképezhető fel, 50 μm -nél jobb laterális felbontással. A detektor egy 0,3 mm vastag duplaoldalú szilícium szalagos érzékelő, melynek $32 \times 32 \text{ mm}^2$ az érzékeny felülete. A detektor p és n típusú oldalán is 640 érzékelő lap van. (Eriksson, 2002), (Osán, 2003), (Eriksson, 2002)

A detektorrendszer nagy előnye, hogy a minta aktivitás eloszlása térképezhető fel vele az abszorbeált dózis kiszámítását követően. A jelet egy kiolvasó chip-pel olvassák ki.

A béta-kamera egy 0,3 mm vastag szcintillátort tartalmaz, amely 427 nm hullámhosszúságú fényt bocsát ki az alapállapotba való visszatéréskor. A fény száloptikával jut el a foto-katódig. A katódból kilépő elektronokat fotoelektron-sokszorozóra vezetik, ahonnan az elektronok az anódra kerülnek, ahol már jól detektálható jelet állítanak elő. Az elektronok keletkezésének helyét egy Anger kamerával határozzák meg. A jel arányos a részecskék által, a szcintillátorban leadott energiával, ami alapján megbecsülhető az elnyelt dózisteljesítmény.

A béta kamera érzékenysége nagyobb, mint az IDE-Bioscope-é, ugyanannyi beütés összegyűjtéséhez 4-szer több időre van szükség az IDE-Bioscope alkalmazása esetén. Az IDE-Bioscope jel/zaj viszonya jobb, a béta kameránál a jel/zaj viszonyon anti-koincidencia rendszerrel lehetne javítani. Elméletileg lehetséges a részecskék alfa-aktivitásának meghatározása is, de ehhez az szükséges, hogy a részecskék elszigetelve legyenek, s ne legyen rajtuk semmi borítóanyag. Hozzá kell tenni, hogy az itt bemutatott két digitális képalkotó rendszerrel viszonylag nagy aktivitású mintákról készíthetnek felvételeket. Nem bizonyított, hogy más eredetű forró részecskék, esetlegesen más, szintén környezeti mintákból származó részecskék azonosítására is alkalmas a két módszer. A thulei részecskékben a Pu, U izotópok aktivitása néhányszor 10 Bq volt (5-85 Bq között volt például a $^{239,240}\text{Pu}$ aktivitása). (Eriksson (2), 2002), (Eriksson, 2004)

Digitális autoradiográfias módszereket kipróbáltak szűrőmintákon levő csernobili forró részecskék vizsgálatához is. A kipróbált DAR digitális autoradiográfias rendszerrel a sugárzás pozícióját, az intenzitását és eloszlását tudták meghatározni. A rendszerrel meghatározható a részecskékben található ^{90}Sr mennyisége. A másik digitális módszerrel a német MWPC rendszerrel a részecskékben található ^{90}Sr aktivitása nem volt becsülhető. A digitális autoradiográfias módszereket összehasonlították egy röntgenfilmes, hagyományos technikával, mellyel szintén meghatározható volt a ^{90}Sr aktivitása. (A film egy mikrobiológiában használatos ukrán gyártmányú röntgenfilm volt, RM-1M). Tapasztalatuk szerint a DAR digitális módszerrel az aktivitások kisebb bizonytalanságokkal becsülhetők meg, nagyobb a módszer érzékenysége és elegendő rövidebb exponálási idő (ami az élőidő üzemmód miatt könnyen optimalizálható). Mindemellett megállapították, hogy a részecskék kimutatására, pozíciójuk meghatározására mindhárom módszer egyaránt alkalmas. (Yoschenko, 2003)

A nagyenergiájú részecskefizikai kutatásokban, a neutronszerzési, röntgendiffrakciós, radiográfias és orvosi kísérletekben is manapság sok esetben digitális képfeldolgozó rendszereket használnak. A mérőrendszerek általában CCD kamerán alapulnak, s a sugárzás helyének pontos meghatározására, töltött részecskék, neutronok, röntgen- ill. gammasugárzás detektálására is alkalmasak és jó térbeli felbontással rendelkeznek. (Sinha, 1996) Nagyfelbontású, béta-sugárzás detektálására alkalmas szcintillátor kristállyal (CsI(Tl)) összekapcsolt képfeldolgozó rendszereket az orvostudományban használnak leginkább kvantitatív autoradiográfiahoz, (^{14}C , ^3H , ^{35}S , ^{18}F , stb. mérésére). (Barthe, 2004) Biológiai, orvosi alkalmazásoknál elterjedtek a hagyományos film autoradiográfian alapuló, CCD kamerás módszerek is. (Charon, 1998)

2.4. Mintafelezéses módszer

Az autoradiográfival, digitális képalkotós berendezésekkel és bétakamerákkal általában csak sík mintákban található forró részecskék azonosítására van lehetőség.

A mintafelezéses eljárással inhomogén, nagyobb térfogatú (néhány tíz grammnyi), szilárd mintákban található forró részecskék azonosítása is lehetséges. (Lásd 10.2.1. fejezet.) Olyan környezeti minták esetében (talaj-, üledék-, növényminták), amik forró részecskét tartalmaznak, a mintát kisebb részekre felosztva, az egyes minta-részek aktivitása gyakran jelentős mértékben eltér, míg homogén minták esetén ez nem valószínű. (Bunzl, 1997)

A mintafelezéses módszer során a mintát két közel egyenlő tömegű részre osztják és megméri mindkét rész gamma-aktivitását vagy a számlálási sebességet (összbéta-alfa mérőberendezéssel). A minta aktívabb részének továbbfelezésével, majd a felezgetés további ismétlésével elkülöníthető a mintának az a része, melyben a forró részecske található. A mintákat nemcsak megfelezve vizsgálhatjuk, hanem több alrészre osztva is. (Vajda, 2001)

Egyforma aktivitású alrészeket kapva sem zárható ki, hogy a mintában forró részecskék találhatók, mivel az alrészek egyforma aktivitásban is tartalmazhatnak forró részecskéket, ezért fontos ismerni, hogy mekkora valószínűséggel találhatók meg így a forró részecskék. Monte Carlo módszerrel végzett számítások szerint a minta-osztásos módszerekkel igen nagy valószínűséggel megtalálhatók a részecskék a környezeti mintákban. A módszer hatékonysága függ a teljes mintában levő részecskék számától, a kialakított almintarészek számától, az alrészek aktivitás mérésének pontosságától, stb. A becslések szerint az aktivitásmérések pontosságának növelése nem előnyös, ha az a vizsgálandó alminták számának csökkenésével jár együtt. (Bunzl, 1997)

A mintafelezés módszerrel elkülönített aktívabb mintarészekben a forró részecskék a későbbiekben már autoradiográfival is azonosíthatók pontosabban ill. lehetővé válhat egyedi részecskék gamma ill. béta spektrometriás vizsgálata is.

A mintafelezéses módszert már az 1950-es, 60-as években is használták a forró részecskék azonosításához, de még napjainkban is az egyik leghatékonyabb módszernek tartják. (IAEA- CRP, 2004) A nukleáris fegyverkísérletek következtében kikerült, a légkörben található hasadási termékeket tartalmazó részecskéket azonosították ezzel a módszerrel. Néhány négyzetmilliméter nagyságú szűrőminta-részek aktivitását mérték egymással párhuzamosan, s a módszert gyakran autoradiográfias vagy nyomdetektoros vizsgálatokkal is kiegészítették. (Kern, 1960)

A thulei üledékminták vizsgálata során a forró részecskéket tartalmazó inhomogén mintarészeket mintafelezési módszerrel keresték meg (a ^{241}Am izotóp gamma vonalának detektálásával), majd a néhány szemcsényire csökkentett mennyiségű mintákat szénragasztóra ragasztották fel és a bennük található forró részecskék pontos helyét valós idejű digitális képalkotó rendszerekkel határozták meg. Béta-kamerát ill. félvezetődetektoros IDE-Bioscop-ot használtak az azonosításhoz. (Eriksson, 2002), (Eriksson (2), 2002)

Szintén üledékmintákban található részecskéket azonosított Pöllänen mintafelezési módszerrel. A balti tengeri üledékmintákban hosszú felezési idejű radionuklidok voltak mérhetőek (^{60}Co , ^{125}Sb , ^{154}Eu) hasonlóan a csernobili forró részecskékhez, ami azt sugallta, hogy ezek a minták is inhomogének lehetnek. A minták felezgetésével, gamma-spektometriás mérésével azonosították a minták aktívabb részeit, majd autoradiográfiával különítették el a részecskéket. A részecskék azonosításával lehetővé vált az egyedi részecskék alfa-, gamma-, béta analízise és elektronmikroszkópos vizsgálata. (Pöllänen, 1999)

A mintafelezési módszert néhány esetben nemcsak nagyterefogatú, hanem nagy felületű minták vizsgálatához használják fel, például szűrőmintákon található részecskéket azonosítottak. (Saari, 1998)

2.5. Nyalábtechnikák

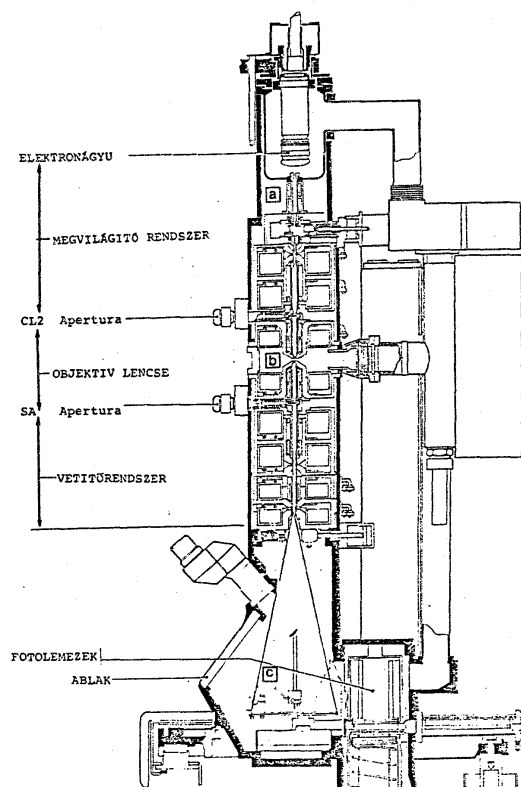
Forró részecskék, üledékek és aeroszolok vizsgálatához napjainkban, széles körben alkalmaznak különféle nyalábtechnikákat. A nyalábmódszerek általában nagy érzékenységgel rendelkeznek, s a minták elemi összetételéről, a részecskék méretéről, morfológiájáról szolgáltatnak információt. A módszerek alapelve egyszerű. A mintákat különböző energiájú töltött részecske- (pl.: elektron, proton) vagy röntgennyalábbal megvilágítva, a mintákból (az atomok elektronhéjáról) elektronok lépnek ki, amelyeket karakterisztikus röntgensugárzás követ. Ennek a karakterisztikus röntgensugárzásnak a detektálásával határozható meg a minta elemi összetétele.

A különféle energiájú és fajtájú nyalábok alkalmazásával a minta eltérő mélységéről szerezhetünk információt, eltérő érzékenységgel. A minták típusától, valamint a gerjesztő nyaláb tulajdonságaitól függően eltérő a behatolási mélység a különféle nyalábtechnikás vizsgálatoknál. Különféle átmérőjű nyalábokkal különböző méretű részecskék összetétele határozható meg. A különféle módszerek eltérő érzékenységek a nehéz ill. a könnyű elemekre, ill. a vizsgálatok érzékenységét a minták típusa, vastagsága is nagymértékben befolyásolhatja. (Vajda, 2001)

A forró részecskék kutatásához leggyakrabban elektronnyalábot alkalmaznak a minták gerjesztéséhez.

2.5.1. Az elektronnyalábos technikák

A transzmissziós elektronmikroszkóp (Radnóczy, 1994)



2.1. ábra A transzmissziós elektronmikroszkóp felépítése (Radnóczy, 1994)

Az elektronmikroszkópok alapvető felépítése nagyon hasonló az optikai mikroszkópokéhoz. Az elektronmikroszkópos vizsgálatok során a "megvilágítás" egy fókuszált elektronnalábbal történik. A transzmissziós elektronmikroszkóp fő részei a megvilágító-rendszer (elektronágyú és kondenzorlencsék), az objektív és a vetítőrendszer. Az elektronmikroszkópos vizsgálatokhoz vákuum szükséges, ezért a berendezés megfelelően kialakított vákuumrendszerben van elhelyezve. A berendezéshez tartozó járulékos részek a tárgyasztal és a megfigyelő/rögzítőrendszer.

A transzmissziós elektronmikroszkópok elektronforrása általában V-alakú fűtött volframszál. Az objektívlencse általában 1-2 (néha 1mm alatti) fókuszávolságú mágneses lencse, felépítése azonos a megvilágító és a vetítőrendszer lencséivel. Az objektívlencse tulajdonságai meghatározóak az elektronmikroszkóp feloldóképessége szempontjából. Feloldóképességen értjük a tárgy azon két pontja közti távolságot, ami még elkülöníthető a képen.

Az elektronmikroszkópos vizsgálatoknál kétféle leképezési móddal valósulhat meg a képalkotás. A mikroszkópos leképezés során az objektívlencse képsíkját vetítik le egy ernyőre vagy fotolemezre, míg a diffrakciós leképezésnél az objektívlencse hátsó fókusz síkját képezik le.

Az előállított képet általában fotolemezen rögzítik, vagyis az elektronokkal fotolemezre exponálják a képet. A kép minősége szempontjából fontos lehet a használt film érzékenysége, valamint a mintatartó stabilitása, a minta rögzítése is. A mintatartók mozgathatóak, elforgathatóak, jól rögzíthetőek, valamint megfelelő termikus és elektromos kontaktust biztosítanak a minta és a mintatartó között.

A transzmissziós elektronmikroszkópos vizsgálatoknál fontos a megfelelő minta előkészítés is. A vizsgálatokhoz általában max. 10-200 nm közötti vastagságú mintákat kell készíteni, melyek általában a mintatartó méretének megfelelően pár mm átmérőjűek lehetnek. A mintáknak a mechanikai-, a hőhatásokkal és a sugárzással szemben is ellenállónak kell lenniük, valamint nem töltődhetnek. Szigetelő anyagok vizsgálatához ezért néhány nm vastagságú szénbevonatot párologtatnak a mintára, hogy az vezetővé váljon.

A pásztázó elektronmikroszkóp (Pozsgai, 1994)

A pásztázó elektronmikroszkóp a minta roncsolásmentes vizsgálatát teszi lehetővé. A pásztázó elektronmikroszkóppal a minta felületét egy elektronnalábbal pásztázzák végig, s a minta felszínének leképezése a mintából kilépő szekunder elektronok, a visszaszórt elektronok, vagy a kibocsátott röntgensugárzás mérésével valósul meg. A pásztázó elektronmikroszkópok felbontóképessége nagyságrendekkel jobb, mint az optikai mikroszkópoké, s nem kizárólag csak vékony minták vizsgálhatóak vele, mint a transzmissziós elektronmikroszkóppal. A pásztázó elektronmikroszkóp működési elve nagyban eltér az optikai mikroszkópétól, nem valósul meg az optikaihoz hasonló leképezés, mint a transzmissziós elektronmikroszkópnál.

A pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatok alapjául szolgáló kölcsönhatások

Az elektronnaláb elektronjai és a vizsgált minta anyaga közti kölcsönhatások eredményeként sokféle jel keletkezik, melyekből a minta domborzatáról, elemi összetételéről kaphatók információk. A kölcsönhatások következményeként az alábbi detektálható jelek keletkezhetnek: (Pozsgai, 1994)

- szekunder elektronok
- visszaszórt elektronok
- abszorbeált elektronok
- karakterisztikus röntgensugárzás
- folytonos röntgensugárzás
- fény
- elektronsugár-indukálta áram

A szekunder elektronok felhasználásával a minta domborzatáról kapható kép. Szekunder elektronoknak nevezik az 50 eV-nél kisebb energiájú elektronokat, melyeket a mintát pásztázó elektronnaláb nagyenergiájú elektronjai a mintából löknek ki (a külső héjakon levő, lazán kötött elektronok kiszakításával), valamint visszaszóródó kis energiájú elektronokat. Ezek együttesen adják az ún. szekunder elektronokat. (Szekunder elektronokat hozhatnak létre maguk a visszaszórt elektronok is, nemcsak a nyaláb elektronjai.)

A minták elemi összetételének meghatározása az ún. visszaszórt elektronok energia vagy hullámhossz szerinti detektálásával valósulhat meg. A minta felszínéről kilépő, 50 eV-nál nagyobb energiájú elektronokat nevezik visszaszórt elektronoknak. A visszaszórt elektronok mennyisége a besugárzó elektronok mennyiségéhez képest monoton nő a mintában található elemek rendszámával, így a visszaszórt elektronok mennyiségéből a vizsgált minta egyes területeinek átlagrendszámára lehet következtetni. A visszaszórt elektronok alapján készített képeken a nagy átlagrendszámú mintarészletek világosak, míg az alacsonyabb rendszámú elemeket tartalmazó részek sötétebbek. A visszaszórt képek általában előzetes vizsgálatul szolgálnak a pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatoknál, ez alapján választják ki a minta érdekesebb részeit a részletesebb mikroanalitikai vizsgálatokhoz.

A visszaszórt elektronképhez hasonló kép készíthető az ún. mintaáram segítségével. A vizsgált mintában elnyelődő (abszorbeált) elektronok alkotják az ún. mintaáramot, amely szintén hordoz információt a minta elemi összetételéről. A mintaáram alapján készített kép fordított kontrasztú a visszaszórt képhez képest.

A gerjesztő elektronnyaláb a mintával való kölcsönhatás révén karakterisztikus és folytonos röntgensugárzást is létrehoz. A karakterisztikus sugárzás akkor keletkezik, amikor a besugárzó nyaláb elektronjai a mintában levő atomok belső héjairól elektronokat löknek ki. Amikor az üres helyre leugrik egy elektron egy külső héjról, az atom a két héj közti energiakülönbségből adódó energiafeleslegtől vagy röntgen foton vagy Auger-elektron formájában szabadul meg. A folytonos röntgensugárzást (fékezési sugárzás, Bremsstrahlung) a mintában lefékeződő, lassuló elektronok hozzák létre.

A mintát vizsgáló nyaláb nagyenergiájú elektronjai sokszor fénykibocsátást okoznak a mintában, ami alapján a minta felületén található rekombinációs centrumokról szerezhető információk.

A pásztázó elektronmikroszkópok felépítése és jellemzői

A pásztázó elektronmikroszkóp felépítése hasonló a transzmissziós elektronmikroszkópéhoz (2.1. ábra). A működtetéshez itt is vákuumra van szükség, ezért az elektronmikroszkópos berendezések fontos része a vákuumrendszer. A pásztázó elektronmikroszkópban használt elektronágyúk jellemző elektron energiája 500 eV-30 keV. Az elektronágyúk többnyire termikus volframatóddal vagy téremissziós katóddal működnek. Az elektronforrásból a nyalábot kondenzorlencsékkel a mintára fókuszálják, a fókuszáláshoz általában mágneses lencsákat használnak. A felbontóképességet - szemben a transzmissziós elektronmikroszkópokkal - az elektronnyaláb átmérője szabja meg. A nyalábátmérő csökkenésével javul a felbontás, bár kis nyalábáramoknál megnövekszik a zaj, ami a kép romlását okozza.

A pásztázás mellett, az elektronok és a minta kölcsönhatása folytán létrejövő jeleket használják fel a képalkotáshoz. A karakterisztikus röntgensugárzás detektálásával a minták elemi összetétele is meghatározható, ami tulajdonképpen az elektronsugaras mikroanalízis alapja.

Elektronsugaras mikroanalízis

Az elektronsugaras mikroanalízis során az elektronnyaláb által kiváltott röntgensugárzás energiáját/hullámhosszát és az intenzitását mérik. A sugárzás energiája ill. hullámhossza jellemző az elemre, amely a sugárzást kibocsátotta, ez teszi lehetővé a minőségi analízist; a sugárzás intenzitása pedig az elem koncentrációjával arányos, ez az alapja a mennyiségi analízisnek. A röntgensugárzás detektálását energia- vagy hullámhossz-diszperzív detektorral oldják meg. Mind az energia mind a hullámhossz-diszperzív technikának vannak előnyei és hátrányai, a két módszer kiegészítheti egymást (2.2. táblázat). (Beamen, 1972)

A hullámhossz-diszperzív (WDS) módszer előnyei	Az energiadiszperzív (EDS) módszer előnyei
Nagy felbontóképesség	Gyors, szimultán elemanalízis
Alacsony detektálási határ, alacsony háttér	Kis áramok, mintakímélő eljárás, jobb laterális felbontás
Könnyű elemanalízisre jól használható	Egyszerűbb működtetés

2.2. táblázat A hullámhossz és az energiadiszperzív módszer összehasonlítása

A röntgenintenzitások mérése során az elektronnyalábot nem mozgatják (pontanalízis), vonal mentén mozgatják (vonalminti analízis), vagy egy felületet pásztáznak (kétdimenziós röntgeneloszlás felvétele). A mennyiségi analízis etalonok segítségével vagy bizonyos esetekben anélkül is történhet.

Az etalon nélküli analízisek előnye a gyorsaság. A mérések alapja ekkor az, hogy feltételezik, hogy az energiadiszperzív spektrométerek paraméterei stabilak. Rögzített mérési körülmények mellett a tiszta elemekből kijövő röntgenintenzitások a rendszám függvényében határozhatók meg méréssel vagy számítással. Új mérési körülmények esetén ez a függvény csak egy konstanssal térhet el, amit azzal a feltételezéssel élve határoznak meg, hogy a koncentrációk összege 100%. A mérés hibáját az okozhatja, ha a minta jelentős mennyiségben tartalmaz könnyű elemeket ($Z < 11$), vagy vannak átfedő csúcsok is.

Az etalonok segítségével történő analízis során relatív röntgenintenzitások meghatározásával számítják ki a mintában levő koncentrációkat. Fontos, hogy az etalonokkal és a mintával végzett mérés esetén a besugárzó áram azonos legyen. Ha ez nem biztosítható, akkor a számításokhoz az intenzitásokat a besugárzó áramra normálni kell. Az etalonos mérések esetén ún. ZAF-korrektíót kell alkalmazni. A ZAF-korrektió a rendszám (Z), az abszorpció (A) és a F (fluoreszcencia) okozta hibákat korrigálja. A rendszámkorrektió segítségével veszik figyelembe, hogy az elektronok szóródása és fékeződése más a mintában és más az etalonokban. Az abszorpció korrekcióval a mintában ill. az etalonokban eltérő önabszorpció hatása vehető figyelembe. A fluoreszcencia korrekció pedig azt veszi figyelembe, hogy a minta nagyobb rendszámú elemeinek röntgensugárzása gerjesztés révén megnövelheti a minta kisebb rendszámú elemeinek röntgenintenzitását.

Mintaelőkészítés

A pásztázó elektromos vizsgálatokhoz minden esetben elektromosan vezető felületű mintát kell készíteni. Kvantitatív elemzés esetén a minta felületének síknak kell lennie, ezért a mintákat polírozni, csiszolni szokták, nehezen kezelhető minták esetén beágyazzák a mintát. Amennyiben a minta nem vezető, akkor egy vékony szénréteg rápárologatásával vagy porlasztásával teszik vezetővé a mintát. A pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatok nagy előnye, hogy a minták kvalitatív vizsgálatához sok esetben nincs is szükség minta-előkészítésre

2.5.2. A részecskenyalábos és röntgennyalábos (XRF) technikák

A részecskenyalábos technikák esetében a mintában levő atomok belső elektronhéjait töltött részecskékkel ionizálják és hasonlóan az elektronnyalábos technikákhoz, a karakterisztikus röntgensugárzást detektálják. Ezzel a vizsgálati módszerrel is a minták elemi összetétele határozható meg, s a minta felszínéről többdimenziós kép készíthető. (Radnóczy, 1994), (Pozsgai, 1994)

A röntgenfluoreszcens vizsgálatok során a mintát röntgen- vagy kisenergiájú gamma-sugárzással gerjesztik és a mintából ennek hatására kilépő röntgen fotonokat detektálják. A gerjesztő fotonnyaláb különféle forrásból származhat, különböző energiájú, nyalábátmérőjű lehet, ennek megfelelően a különféle XRF vizsgálatok alkalmazhatósága is igen eltérő. A gerjesztő forrás származhat radioaktív forrásból, röntgensövből, vagy szinkrotronsugárzás is lehet.

Az egyéb nyalábtechnikákkal szemben az XRF mérések nagy előnye az alacsony folytonos háttér, ami lehetővé teszi a nyomnyi mennyiségek kimutatását is. Az XRF módszerek további előnye, hogy széles koncentráció tartományban alkalmazhatók, s a többi nyalábtechnikákhoz hasonlóan a minták roncsolásmentes analizését teszik lehetővé. A röntgenemisszió alapuló módszerek jellegzetes tulajdonságai még a gyorsaság és a már említett nagy érzékenység. Mivel a röntgensugárzás kevésbé fókuszálható, mint az elektron- és egyéb részecskenyalábosok, ezért a minta lokális analizésére kevésbé alkalmas. (Pozsgai, 1994)

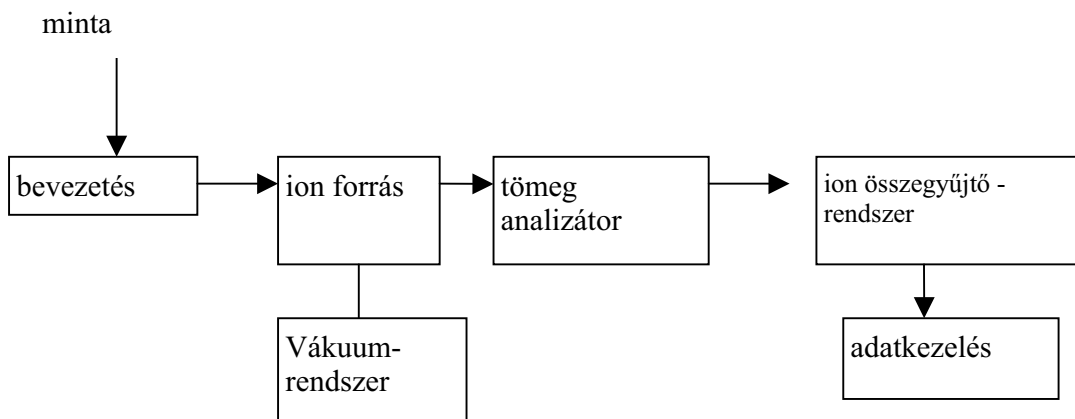
A szinkrotronsugárzás alkalmazásnak nagy előnye az XRF módszereknél, hogy ez a sugárzás jóval nagyobb intenzitású, mint a röntgensövek esetében. A szinkrotronsugárzás polarizált, folytonos röntgensugárzás.

A röntgensövekből jövő sugárzással szemben a szinkrotronsugárzás sokkal kevésbé divergens, könnyebben és hatékonyabban kollimálható, fókuszálható és monokromatizálható. Az XRF-et kombinálva a röntgensugárzás abszorpciójának finom analizésével (XAFS: X-ray absorption fine structure) információk nyerhetők az atomok helyi elrendeződéséről, elektromos állapotukról, feltérképezhetők a kémiai kötések és az elemek oxidációs állapotai.

2.6. Tömegspektrometriás módszerek

A tömegspektrométerek szerves és szervesetlen minták multielem analizésére alkalmasak. A tömegspektrométerekkel kvalitatív és kvantitatív információk nyerhetők a minták atomi és molekuláris összetételéről. A tömegspektrométerek működése a tömeg/töltés arány szerinti elemmeghatározás. A tömegspektrométerekben a minta összetevőiből töltött részecskéket állítanak elő, melyeket aztán elektromágneses térbe vezetve egy analizátorral tömeg/töltés arány szerint szétválogatnak. A tömegspektrometriás módszerek nagy előnye a nagy érzékenység és a kevés mintaszükséglet. A mérésekhez általában milligramm, vagy nanogramm alatti mennyiség is elegendő lehet a berendezéstől függően.

A tömegspektrométerek alapvetően három szerkezeti egységből állnak (2.2. ábra). Az első részben a gázionok előállítása történik a mintából, a második részben az ionokat szétválogatják tömeg/töltés szerint, míg a harmadik részben az előforduló tömegek gyakoriságát mérik meg relatív módszerrel.



2.2. ábra Tömegspektrométer felépítésének vázlata

Elsőként bevezetik a gáz ill. illékony mintát az ionizáló kamrába a bevezető rendszerből, majd az ionokat szétválogatják diszkrét tömeg/energia arányok szerint, ami elég egyszerűen megtehető az energia, a lendület vagy a sebesség mérésével. Korábban az energiát és a lendületet mérték, napjainkban azonban vannak olyan spektrométerek, melyek az energia és a sebesség (repülési idő spektrométer) ill. a lendület és a sebesség mérésén (Fourier transzformációs spektrométer) alapulnak. A különféle spektrométerek eltérő módon oldják meg a minták bevitelét, ionizációját ill. a tömegmeghatározást. A minta bevitele függ a minta halmazállapotától. Az ionizáció kétféle módon történhet alapvetően, lehet gáz fázisú az ionizáció ill. alkalmazhatnak deszorpciós módszert. A leggyakrabban használt ionizációs technika a gáz fázisú ionizációnál az elektron-ütköztetési ionizáció (electron impact ionization), de használnak kémiai ionizációt, ill. elektromos térrel is ionizálnak. A deszorpciós ionizációnál a deszorpció történhet elektromos térrel, vagy bombázzák a mintát gyors atomokkal is. Sokszor az ionizáció nemesgáz ionnyalábjával bombázzák a mintát, és a mintából kilépő másodlagos ionokat detektálják. (SIMS: secondary ion mass spectrometry). Ezzel a módszerrel a minták 1-2nm vastag részéről kaphatók információk. A SIMS-el elemi és izotópösszetétel is meghatározható. A deszorpció létrehozható plazmagerjesztéssel, termikus úton ill. lézernyalábbal is. A különféle spektrométerek eltérőek az analízator felépítésében, valamint az ionösszegyűjtő rendszerekben is (Williard, 1998).

2.7. Alkalmazások a forró részecskék kutatásában

A forró részecskék elemi összetételének meghatározásához, a részecskék alakjának, méretének morfológiájának vizsgálatához pásztázó elektronmikroszkópokat alkalmaztak legkorábban. A mikronyalábtechnika megjelenésével, az 1980-as években vált lehetővé a forró részecskék különféle XRF berendezéssel történő tanulmányozása.

Elsőként a nukleáris fegyverkísérletek során kikerült forró részecskék tanulmányozásához használtak elektronsugaras módszereket. 1985-ben Németországban egy óriási méretű, 64µm-es részecskét elemeztek, amit 1962-ben gyűjtöttek Németországban és valószínűleg az szovjet fegyvertesztek során került ki a környezetbe. A pásztázó elektronmikroszkópos elemzéssel a talaj összetevői mellett nagy mennyiségű uránt mutattak ki a részecskében. (Grüter, 1985)

Elektronmikroszkóppal vizsgáltak a Windscale-i grafittűz-baleseti kibocsátáskor kikerült részecskéket, melyek jellemzőit összehasonlították a csernobili eredetű részecskék jellemzőivel. (Salbu, 1994), (Salbu, 1998)

A csernobili baleset során kikerült forró részecskék tanulmányozásához is gyakran alkalmaztak elektronsugaras technikákat. Finnországban autoradiográfias felvételek segítségével különítették el a részecskéket a SEM és a mikrosugaras XRF vizsgálatokhoz. A SEM-os vizsgálatoknál a nyaláb átmérője 0,01µm volt, ami igen hosszadalmassá tette a részecskék vizsgálatát. A röntgensugaras vizsgálatokkal a Na-tól az U-ig tudták meghatározni az elemeket. (Saari, 1998)

Lengyelországban talált csernobili eredetű forró részecskék vizsgálatához SEM-et ill. EPMA-t használtak a részecskék gammaspektrometriai vizsgálata után. A pásztázó elektronmikroszkóppal a részecskék alakját, méretét (4-14µm) határozták meg, míg az energiadiszperzív módszerrel a különböző mennyiségben jelenlevő Mo, Tc, Ru ill. Pd-ot detektáltak. Egyes minták esetében mennyiségi elemzést is végeztek az EPMA-val. (Schubert, 1987)

A csernobili eredetű részecskék magyarországi vizsgálataiban során a nyomdetektoros, gamma-spektometriás mérések mellett pásztázó elektronmikroszkóppal is végeztek elemzéseket. A forró részecskék méretének tényleges meghatározása a SEM-al rámutatott arra, hogy a részecskék néhány mikrométeres méretéből adódóan előfordulhat a környezetbe kikerült részecskék belégzése. (Balásházy, 1988)

A csernobili eredetű forró részecskéket találtak tengeri üledékmintákban is. A balti tengeri üledékmintákban a részecskéket autoradiográfia és gamma-spektrometria segítségével azonosították, a részecskék alakját, elemi összetételét pedig pásztázó elektronmikroszkóppal határozták meg. (Pöllänen, 1999) Vizsgálták a részecskék lehetséges terjedési útját, ami kapcsolatban van a részecskék méretével, valamint a részecskék okozta radiológiai kockázattal is foglalkoztak. (Pöllänen, 1997), (Pöllänen (2), 1997)

Az 1968-as thule-i baleset során kikerült részecskék szerkezetét, méretét, morfológiáját is elektronmikroszkóppal vizsgálják napjainkban. A részecskék összetételének, néhány esetben az elemek oxidációs állapotának meghatározásához ICP-MS-t ill. mikronyalábos röntgenfluoreszcenciás módszereket alkalmaznak. (Eriksson, 2002), (Osán, 2003)

Az ITU-ban (Institute for Transuranium Elements) SIMS-el egyedi urántartalmú részecskéket vizsgáltak, melyeket környezeti (többnyire szűrő) mintákban találtak. Meghatározták a részecskékben levő uránizotópok mennyiségének arányát. (Tamborini, 1998) Szintén egy ITU-ban folyó program keretében standard referencia anyagok korát határozták meg tömegspektrometriás mérésekkel a Pu ill. U izotópok arányainak ($^{238}\text{Pu}/^{234}\text{U}$, $^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$, $^{240}\text{Pu}/^{236}\text{U}$, $^{242}\text{Pu}/^{238}\text{U}$) mérésével. A SIMS-es meghatározáson alapuló módszer kidolgozásának fontos szerepe van a környezetbe kikerült forró részecskék vizsgálatában, eredetük meghatározásában, s ez által a safeguard mérésekben is. (Wallenius, 2001), (Wallenius, 2000), (Wallenius, 2001)

A számítógépes képfeldolgozás fejlődésével lehetővé vált a forró részecskék háromdimenziós megjelenítése is. Szinkrotron-nyalábos berendezéssel felvett képek háromdimenziós rekonstrukciójával csernobili eredetű forró

részecskékben mutatták meg urán inhomogén eloszlását ill. robbantásokból származó részecskéket jelenítettek meg háromdimenziós képeken számítógépes mikro-tomográfiával. (Salbu, 1999), (Salbu, 2001)

2.8. Radioanalitikai módszerek

A forró részecskék vizsgálata esetén kiemelten fontos a részecskék összaktivitásának meghatározása mellett a részecskék izotópösszetételének meghatározása is.

A forró részecskékben található alfa-, béta- ill. gammasugárzó izotópok energiája, aktivitása meghatározó a részecskék dozimetriai hatása szempontjából. A részecskékben található izotópok aktivitás arányaiból (pl: a gammasugárzó $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarányból) a részecskék eredetére, a kibocsátó forrás tulajdonságaira lehet következtetni.

A forró részecskék izotóp-összetételének meghatározására különféle radioanalitikai módszerekkel van lehetőség. Napjainkban a gamma-, béta- és alfa-spektrometriás módszerekkel már nemcsak nagy mennyiségű minták elemzésére van lehetőség, hanem a radioanalitikai módszerek a forró részecskék kutatásában is jelentős szerepet töltenek be.

2.8.1. Gamma-spektrometria

A mintákban található gammasugárzó izotópok sugárzásának detektálásával, a mintákban található izotópok minőségi és mennyiségi analízisére van lehetőség. A gamma-spektrometriás mérések nagy előnye, az alfa- és béta-spektrometriával szemben, hogy nincs szükség a minták kémiai feldolgozására. A gamma-spektrometriás méréseknel általában szcintillációs vagy félvezető detektorokat használnak.

A szcintillációs detektorok jó hatásfokkal rendelkeznek, feloldási idejük nagyságrendekkel kisebb (mikroszekundum nagyságrendű), a gáztöltésű detektorokénál. Hátrányuk, hogy érzékenyebbek a háttérsugárzásra, hőmérsékletre, külső elektromos és mágneses terekre, mint a gáztöltésű detektorok. A félvezető detektorok hatásfoka kisebb, mint a velük azonos elrendezésű szcintillációs detektoroké, viszont jobb energiafelbontóképességgel rendelkeznek, mivel a félvezető detektorok esetében kell a legkevesebb energia egy töltéshordozópár keltéséhez és az energiakonverziót kísérő inherens bizonytalanság is kicsi. Ezek a detektorok is igen gyorsak, feloldási idejük mikrosecundum nagyságrendű. A gamma-spektrometriához általában NaI(Tl), CsI(Tl) kristályokat vagy Ge detektorokat használnak. A gamma-spektrométert leginkább az energiafelbontóképessége, hatásfoka, érzékenysége, holtideje jellemzi. Ezek persze nem csak a spektrométertől, detektortól, elektromos zajtól függenek, hanem a mérés geometriájától, a sugárzás energiájától stb.

A méréshez alkalmazandó mérés technikát nagyban befolyásolja a minta aktivitás-koncentrációja, összetétele. Míg nagy intenzitások mérése esetén a holtidő jelenthet problémát, s ezt kell korigálni ill. lehetőleg kis holtidejű berendezésekkel kell elvégezni a méréseket, addig a kis intenzitások mérésekor a cél a háttér csökkentése, a számlálási hatások növelése. A gamma-spektrometriás mérések elméleti háttere és a spektrumok kiértékelésének módja, melyet a BME NTI-nél alkalmaznak részletesen megtalálható az alábbi irodalmakban (Kerkápoly, 2001), (BME NTI, 2003).

2.8.2. Bétaszámlálás és béta-spektrometria

Bétaméréseket gyakran alkalmaztak a forró részecskék kimutatására, mivel sok hasadási termék béta-sugárzó. A módszer előnye a gyorsaság, viszont nem tesz lehetővé kvantitatív analízist. A felületi szennyezettségmérők (GM csövek) különösen nagy területek monitorozásakor használhatók jól ill. a mintafelezési módszer során, a forró részecskék elkülönítéséhez alkalmazhatók.

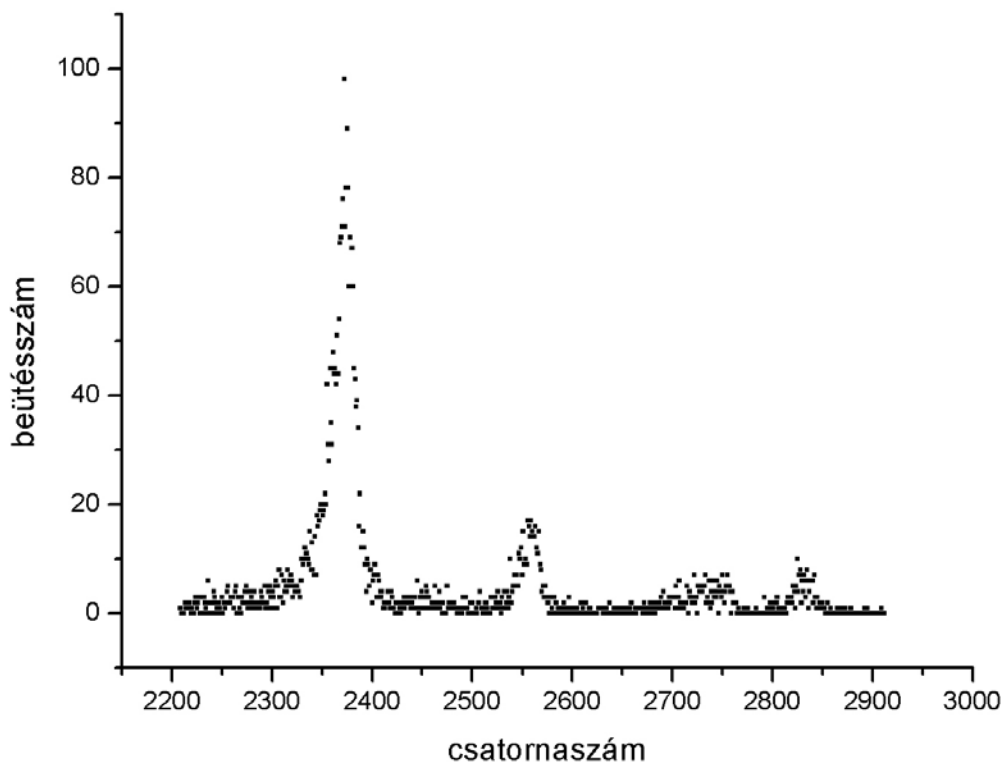
A minták béta-spektrometriás vizsgálatára csak radiokémiai feldolgozás után nyílik lehetőség. Mivel a béta-sugárzás folytonos spektrumú, nem karakterisztikus sugárzás, így spektrometriáról csak bizonyos megkötésekkel lehet szó. A folytonos béta-spektrumban az izotópok azonosítása problémát okoz, azonban az alacsony háttérű folyadék-szcintillációs mérőberendezésekkel ill. plasztik béta detektorokkal ma már lehetőség van egy-két izotóp megkülönböztetésére a béta spektrumban. A béta-spektrometriás mérések elméletét, a spektrumok kiértékelését részletesen ismertetik (Kerkápoly, 2001), (BME NTI,2003).

2.8.3. Alfa-spektrometria

Alfa-spektrometriás mérésekkel a forró részecskékben található alfasugárzó izotópok mennyisége határozható meg. A mérések előnye a nagy érzékenység, hátránya, hogy az alfa-spektrometriás méréseket szükségszerűen (az alfasugárzás kis hatótávolsága miatt) radiokémiai feldolgozás előzi meg, így eléggé hosszadalmas a minták elemzése. Az alfaforrás készítésekor, minél vékonyabb, ún. „végtelen vékony forrás” készítése a cél. Az alfasugárzás hatótávolsága rövid, ezért vékony forrást kell készíteni, hogy az önabszorpció a mintában ne legyen jelentős, mert ez a hatásfokot és az energia szerinti azonosítás lehetőségét is rontja. Általában kb. 10 μm alatti vastagságú minták készítése a megszokott a gyakorlatban. Az alfaforrás készítése

bepárlással, elektrolízissal, vákuumgőzöléssel, mikrocsapadékos együttleválasztással történhet. A detektáláshoz általában félvezető, felületi záróréteges Si detektort (PIPS detektort) ill. ionizációs kamrákat használnak. A különböző aktivitású mintákhoz más és más a célszerűbb módszer. A folyadék-szintillációs mérés technikával is lehet alfasugárzást detektálni, jó hatásfokkal. A folyadék-szintillációval azonban spektrometriás mérések nem valósíthatók meg, mivel nem megfelelő a felbontás. Az alfa-spektrometriás mérések elméletét, a spektrumok kiértékelését részletesen ismertetik a (Kerkápoly, 2001), (BME NTI, 2003) irodalmak.

A 2.3. ábra egy üzemzavari vízmintából származó részecske Am/Cm frakciójának spektrumát mutatja. (YA2E jelű részecske adatai, melynek spektruma a 2.3. ábrán látható később a 9. fejezetben található meg.) A spektrumban látható csúcsok növekvő energia (ill. csatornaszám szerint) ^{243}Am , ^{241}Am , ^{244}Cm , ^{242}Cm .



2.3. ábra Am/Cm frakció spektruma

2.8.4. Gamma-, béta és alfa-spektrometria alkalmazása a forró részecske-kutatásban

A forró részecskékben található hasadási termékek, korróziós termékek nagy része gammasugárzó. Mind a kikerült fűtőelem-fragmentumok, mind a korróziós szemcsék radioanalitikai összetételének meghatározásában jelentős szerepe van a gamma-spektrometriának. A gammasugárzó I, Cs, Zr, Nb, Ce, Mo, Tc, Ru, Ba, La izotópok aktivitása határozható meg gamma-spektrometriás elemzéssel a forró részecskékben. A $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ arányának mérésével következtetni lehet a részecskék eredetére, a kibocsátó forrásra ill. bizonyos feltételek mellett a fűtőelem-részecskék kiégése is megbecsülhető az aktivitásarányokból (4.5.1 fejezet).

Béta-spektrometriás mérésekkel legtöbbször a béta-sugárzó ^{90}Sr és ^{89}Sr aktivitását határozzák meg forró részecskék esetében. A részecskék eredetének meghatározásában néhány esetben segíthet a $^{90}\text{Sr}/^{89}\text{Sr}$ arányának kimérése, bár a ^{89}Sr izotóp rövid felezési idejű ($T_{1/2}=50,65$ nap).

Alfa-spektrometriás mérésekkel általában a részecskékben található alfasugárzó U ill. transzurán izotópok mennyiségét határozzák meg. Az alfa-spektrometriás méréseknek, az alfasugárzó $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ arányának mérésével hasonló szerepük van a részecskék eredetének meghatározásában ill. bizonyos feltételek mellett a részecskék kiégésének megbecslésében is. (A kiégés becslés részleteit a 4.5.1 fejezet tartalmazza.)

A csernobili kibocsátásból származó részecskék gamma-spektrometriás vizsgálatára számos helyen sor került. Finnország délnyugati részén fenyőfák tűleveleiről gyűjtöttek forró részecskéket a balesetet követően áprilisban. A részecskéket radiográfiával lokalizálták, majd elkülönítették és SEM-el, XRF-el és gamma-spektrometriával vizsgálták. A részecskék egy része ^{141}Ce -ot és ^{144}Ce -ot, ^{95}Zr -ot és ^{95}Nb -ot tartalmazott. Voltak részecskék, melyekben gamma-spektrometriás méréssel csak a ^{103}Ru és a ^{106}Ru izotóp volt kimutatható. Egyes szemcsék pedig szinte csak U-t tartalmaztak. A részecskékben ^{137}Cs és ^{134}Cs -ot csak kevés mennyiségben volt

megtalálható. (H. Saari 1989) Budapesten gyűjtött csernobili részecskékben is gamma-spektrometriás mérésekkel határozták meg a gammasugárzó izotópok aktivitását (^{95}Nb , ^{95}Zr , ^{103}Ru , ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{144}Ce). (Balásházy, 1988) Alfa-spektrometriás mérésekkel határozták meg thulei forró részecskékben a ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ és a ^{241}Am izotópok mennyiségét és arányukat. (Eriksson 2002). Gamma-spektrometriás mérésekkel a ^{210}Pb és a ^{137}Cs aktivitását mérték a grönlandi üledékmintákban. (Eriksson, 2004) Gamma-spektrometriás mérések eredményei alapján vizsgálták a csernobili részecskék eredetét Lengyelországban. A részecskékben található gammasugárzó hasadási termékek arányából próbálták meg következtetni a forró részecskék származási helyére, hogy milyen korú fűtőelemből kerülhettek ki. (Piasecki, 1990)

Finnországban egy oroszországi atomerőmű üzemzavara során kikerült szennyeződés volt kimutatható (1992.március.24.- Sosnovy Bor nukleáris incidens). Az RBMK reaktor üzemzavara következtében részecskeformájú szennyeződés kerülhetett ki a környezetbe, mivel Finnországban a levegőszűrőkről autoradiográfiával forró részecskéket lehetett elkülöníteni. A részecskékben található gammasugárzó izotópok arányát alacsonyháttérű gamma-spektrometriás mérőrendszerrel határozták meg és többek között a mért aktivitás arányokból valószínűsítették a szennyeződés eredetét. (Toivonen, 1992)

3. Nem környezeti mintákban jelenlevő forró részecskék - primerköri forró részecskék

Sok esetben atomerőművekkel kapcsolatos mintákban, például primervíz mintákban is lehet az aktivitás inhomogén eloszlású. A reaktorok hűtővizének, primervizének elemzését rendszeresen elvégzik a fűtőelemek állapotának értékelése kapcsán, azonban nemcsak a vízminták teljes aktivitása lehet érdekes, hanem a vízben esetlegesen megjelenő nagyaktivitású részecskék radiokémiai ill. elemi összetétele is. A primervízben keringő részecskék tulajdonságai, hasonlóan a környezetbe kikerült forró részecskékhez, a kibocsátó forrásról (jelen esetben a hibás fűtőelemeletről) hordoznak fontos információkat.

3.1. Primervíz szennyeződése, forró részecskék kikerülése a hűtőközegbe

Az atomerőművek primervize több okból kifolyólag is tartalmaz szennyeződéseket még hermetikus fűtőlempálcák esetén is. A szerkezeti anyagok korróziója miatt a primervíz aktivitásának jelentős részét a korróziós termékek aktivitása teszi ki, de a vízben található szennyezők, adalékanyagok aktivációs termékei is mérhetőek a vízben. A vízben található hasadási termékek még abban az esetben is, ha a zónában nincs sérült fűtőelem. Az ép fűtőelemek esetén a hasadási termékek jelenlétének oka a fűtőelemek felületi uránszennyezettsége. A felületi uránszennyezés egy része a gyártás során kerül a fűtőelemek felületére, de a korábbi kampányok hibás fűtőelemeiből kikerült uránszemcsék is lerakódnak a felületeken, ezzel növelve a későbbi kampányokban a hasadási termékek mennyiségét a hűtővízben.

A burkolat meghibásodása esetén az inhermetikussá vált fűtőelemből kikerülhetnek az illékony valamint nagyobb hiba esetén a kevésbé illékony hasadási termékek is a primervízbe, ami a víz aktivitásának megnövekedését okozza. A legfontosabb illékony hasadási termékek és hasadási gázok, amik kikerülnek a primervízbe a xenon, kripton, jód, cézium izotópok.

A különböző hasadási termékek aktivitáskoncentrációját a primervízben sokféle tényező befolyásolhatja, az aktivitás értéke függ a nuklidok keletkezési sebességétől, felezési idejétől, fizikai és kémiai tulajdonságaiktól, a reaktor üzemeltetési paramétereitől valamint a hibás fűtőelemek számától és a fűtőelemhiba jellegétől. (Vajda, 1999)

A felületi szennyezettségből adódó hasadási termékek izotóparányai és a hibás fűtőelemből kikerülő hasadási termékek izotóparányai eltérőek, ami az izotópok eltérő felezési idejéből, valamint migrációs tulajdonságaiból adódik. A fűtőelem-sérüléseken keresztül csak a hosszabb felezési idejű, s többnyire illékony hasadási termékeknek van lehetőségük a kijutásra a primervízbe, míg a felületi uránszennyezettségből keletkező hasadási termékek mind megjelennek a vízben. A fűtőelem-hibákon keresztül történő hasadási termék kibocsátás függ a meghibásodás típusától, a hiba méretétől is.

3.1.1. Hibatípusok (Mikro- és makrohibák)

Mikrohibának nevezhető a fűtőelem meghibásodása, ha a fűtőelemburkolaton levő repedéseken keresztül csak az illékony és gáznemű hasadási termékek juthatnak ki a hűtőközegbe. Makrohibás fűtőelem esetén a primervízbe nemcsak az illékony hasadási termékek kerülnek ki, hanem a fűtőelem makrorepedésein át a kevésbé illékony hasadási termékek is kijutnak, így a nehezen oldódó transzurán izotópok, további mikroméretű fűtőelem-fragmentumok is megtalálhatók a primervízben, mivel ekkor az üzemanyag közvetlenül érintkezik a primervízzel. (Vajda, 1998) A különféle fűtőelemhibák jellemzőit ill. kialakulásuk okait részletesen ismertetik: (Hózer, 2003), (Hózer, 2004)

3.2. Meghibásodási statisztikák

A fűtőelemek-sérülésének vizsgálata, a hűtőközeg elemzése során fontos a kapott eredmények összehasonlítása korábbi meghibásodási statisztikákkal. Érdekes a különféle hibatípusok részaránya az egyes reaktortípusoknál, az éves meghibásodási gyakoriságok, valamint a különfajta sérülési mechanizmusok előfordulásának változásai az évek során. A meghibásodási statisztikák elkészítésének, elemzésének nagy szerepe van abban, hogy mind a fűtőelem-gyártás fejlesztésének, mind az üzemeltetési paraméterek megváltoztatásának köszönhetően egyre kevesebb a sérült fűtőelemek száma a zónákban. A burkolatanyagok továbbfejlesztésével, valamint a kopást előidéző fémhulladékok kiszűrésére kifejlesztett hulladékszűrőkkel, a hűtővíz mechanikai tisztításával a fűtőelem-meghibásodások számát a 90-es évek végére sikerült jelentősen csökkenteni. Míg a 30 évvel ezelőtti zónákra vonatkozó statisztikai adatok szerint szinte minden kampányban volt szivárgó fűtőelem a reaktorokban, addig jelenleg a meghibásodási gyakoriság 10^{-5} , ami azt jelenti, hogy csak minden negyedik-ötödik kampányban fordul elő szivárgás. (IAEA, 1998), (Hózer, 2004)

4. Fűtőelem-meghibásodással kapcsolatos vizsgálatok

4.1. Hibás fűtőelemek azonosítása

A sérült fűtőelemek megjelenését a reaktorban a primerköri hűtőközeg aktivitásának növekedése jelzi. A meghibásodott fűtőelemek azonosítására a kazettákat a leállás után egyedileg vagy csoportosan meg kell vizsgálni, ennek legelterjedtebb módja a *sipping* vizsgálat.

A vizsgálat alapja, hogy a hibás fűtőelemből kikerülő hasadási termékeket detektálják a sipping során, rendszerint a Cs, I, Kr és Xe izotópok aktivitását mérik. A sipping módszer mind a PWR, mind a BWR reaktorokban elterjedt mód a kötegek egyedi vagy csoportos vizsgálatára, a hibás köteg kiválasztására. A sipping során a minősítendő fűtőelem-köteget (kötegcsoportot) elkülönítik és mérik a nyomáskülönbség hatására kibocsátott hasadási termékek mennyiségét. A burkolat alól legkönnyebben a nemesgázok, valamint a jód és a cézium izotópok jutnak ki. A reaktor leállítását követően általában a rövid felezési idejű izotópokat (pl.: ^{133}Xe , ^{131}I) mérik, míg hosszabb pihentetési idő után a hosszú felezési idejű izotópokat (pl.: ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{85}Kr) detektálják (Hózer, 2004), (Markov, 2003).

A hibás fűtőelemek azonosítása sokféle sipping módszerrel történhet. A sipping vizsgálatok különbözhetnek:

- a rendszer szerkezetének kialakításában,
- a fizikai jelenségben, amivel a hasadási termék kibocsátást előidéz, (az alkalmazott vákuumban, a felfűtésben vagy az emeléssel létrehozott nyomáskülönbségben).

Az alkalmazott fizikai jelenségek és az elrendezés alapján vannak vákuumos sipping, száraz sipping, nedves sipping vizsgálatok (Hózer, 2004), (IAEA, 1998) A sipping vizsgálatot végezhetik a reaktortartályban (in-core sipping) ill. a zónán kívüli vizsgálótokokban (out of core sipping). A reaktortartályban végezhető sipping vizsgálatokkal relatíve gyorsan eldönthető, hogy hibás-e a vizsgált köteg vagy kötegcsoport. A vizsgálótokos sipping vizsgálatok időigényesebbek, viszont a kötegben levő hibás fűtőelemekről bővebb információk szerezhetők (hiba mérete, hibák száma is meghatározható). A vizsgálótokos sipping vizsgálatokat általában a pihentető medencében végzik el.

4.2. Melegkamrás roncsolásos vizsgálatok

Az előzőekben ismertetett sipping módszerek a hibás fűtőelemeket tartalmazó kazetták kiválogatására alkalmasak. Ezzel elősegíthető a primerköri aktivitás csökkentése, hiszen a szivárgó fűtőelemeket nem feltétlenül szükséges visszatenni az aktív zónába.

A kazettán belül a hibás fűtőelem megkeresése és a meghibásodás okának, mechanizmusának kiderítése további vizsgálatokat igényel. Ehhez általában szét kell szedni a fűtőelem kazettákat, el kell távolítani belőlük a fűtőelemrudakat, majd azokat egyedileg megvizsgálni. A vizuális megfigyelés nagyon fontos információkat adhat a meghibásodásról, de sokszor további vizsgálatokra is szükség van (pl. metallográfiára).

4.3. A fűtőelemek állapotának értékelése a primervíz aktivitása alapján, analitikai és modell számítások segítségével

A fűtőelemek állapotának vizsgálatára nyújt lehetőséget a primervíz aktivitásának és összetételének nyomonkövetése. A hasadási és transzmutációs termékek aktivitásának megnövekedése a primervízben a fűtőelemek meghibásodására utal. A fűtőelemek meghibásodásának vizsgálatára a víz aktivitáskoncentrációjának mérésével többféle módon van lehetőség, *analitikus számításokkal*, valamint *empirikus modellekkel* egyaránt.

A nyomottvízes reaktorokban általában az illékony jód és cézium izotópok aktivitását mérik normál és tranzienst üzem körülmények között, míg a forralóvízes reaktorokban általában a nemesgáz izotópok aktivitását mérik. A primerköri hasadási termékek aktivitáskoncentrációi alapján megadható, hogy a zónában van-e hibás fűtőelem, a domináns hiba mikro- vagy makro-meghibásodás-e, becsülhető a dominánsan hibás fűtőelemek átlagos kiégése, a hibás fűtőelemek száma, a felületi uránszennyezettség mértéke, stb. (Vajda, 1998)

A fűtőelemek állapotának értékelése még azonos típusú reaktorok esetében is sokféleképp történik, a VVER reaktorok esetében is eltérőek a módszerek. A fűtőelemek állapotát általában csak kvalitatív módon vizsgálják, a hibás fűtőelemek számát, a hibák méretét csak néhány helyen becsülik, modellezik, de nem egységesen kidolgozott módszer, program alapján. (Vajda, 1999) Az eltérések mind a fűtőelemek, mind az üzemeltetési paraméterek különbözőségeiből adódnak. Az egyes reaktoroknál emellett eltérőek lehetnek az alkalmazott mérés technikák, számítási módszerek is. (Hózer, 2003)

A kvantitatív értékelésre, a hibás fűtőelemek számának becsülésére kétféle módon van lehetőség, a *teljes aktivitás* ill. a *regressziós módszer* alkalmazásával.

A teljes aktivitás módszere esetén a hibás fűtőelemek számát a mért primerkörü aktivitás érték és standard értékek alapján adják meg. A mért primerkörü aktivitás értékét hasonlítják össze egy darab hibás fűtőelemhez tartozó várható aktivitás értékkel, és ezek aránya alapján becsülik a zónában levő hibás fűtőelemek számát. A módszer hátránya, hogy az előző kampányokból kikerült urán aktivitását nehéz figyelembe venni.

A regressziós módszerek során a mért értékek felhasználásával modellek alkalmazásával becsülik meg a hibás fűtőelemek számát. A modellegyenletek paramétereit a mért értékek alapján határozzák meg. A modellekkel a primerkörben már jelenlevő aktivitás, korábbi kampányok során kikerült aktivitás is figyelembe vehető. A módszer hátránya, hogy a szivárgási folyamatok modellezése során nemlineáris egyenletrendszerek megoldására van szükség. Ennél a módszernél a megoldásokat nagymértékben befolyásolhatja a regressziós eljárás, valamint a kezdeti értékek. A „kinetikus” modellnél a problémák legyőzhetőek, ha az R/B (release-to birth ratio/ az egyes izotópok kibocsátás- keletkezés aránya) és hibás fűtőelemek száma között lineáris kapcsolat áll fenn.

A legtöbb modell, amit a PWR reaktorok fűtőelem vizsgálataihoz használnak, a jód izotópokon alapul. A mért jódkoncentrációk alapján jósolják meg a hibás fűtőelemek számát, habár az elemzésekhez a nemesgázok aktivitáskonzentrációja is felhasználható lenne. (Hózer, 2003), (Chun, 2000), (Chun, 1998) Egyes tanulmányok szerint a nemesgázok felhasználásával kapott eredmények megbízhatóbbak, mint amiket a jódkoncentrációk felhasználásával adódnak. A nemesgázok kémiaiailag stabilabbak, elhanyagolható az adszorpciójuk a primerkörü felületeken és megkötődésük az ioncserélőkön, ezért megbízhatóbbak a számítások. A nemesgázok terjedése a résben (gap) diffúzióval írható le, ami a jód izotópok esetében nem biztos. Egyes esetekben diffúziós és „kinetikus” modellt is használnak a becslésekhez, a diffúziós modellben a nemesgáz aktivitásokat, míg a „kinetikus” modellben a jódkoncentrációkat használják bemenő paraméterként. (Chun, 2000), (Chun, 1998)

4.4. A paksi fűtőelemek állapotának értékelése

A paksi fűtőelemek állapotának értékelése a primervíz elemzése alapján történik. Lehetőség lenne a fűtőelemek sipping vizsgálatára is Pakson, mivel létezik orosz, VVER reaktorokra kifejlesztett nedves sipping (KGO) berendezés valamint vizsgálatokos módszer, azonban ezeket technikai vagy gazdasági okok miatt ritkán használják. (Hózer, 2004) A kiegészítő fűtőelemek utólagos vizuális ill. roncsolásos analízisére Magyarországon nincs lehetőség. A kiegészítő fűtőelemek vizsgálatához ugyanis speciális melegkamrák berendezésekre van szükség, amelyek Magyarországon nem állnak rendelkezésre. VVER fűtőelemek ilyen jellegű vizsgálata Dimitrovgradban (Oroszországban) lehetséges, azonban az orosz fűtőelem-meghibásodással kapcsolatos adatok nehezen hozzáférhetőek.

4.5. A fűtőelemek állapotának értékelése a paksi atomerőműnél a primervíz mérések alapján

A paksi fűtőelemek állapotát 1990-óta rendszeresen értékelik. Normálüzemi körülmények között (stabil reaktorüzem mellett) és tranziens üzem alatt (reaktorleálláskor) a jód, cézium, stroncium és a transzurán izotópok aktivitását mérik. (Vajda, 1999) Elsőként a primervíz gamma-spektrometriás vizsgálatát végzik el, meghatározzák a jód (^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I) és a Cs (^{137}Cs , ^{134}Cs) izotópok aktivitását. (A gamma-spektrometriás mérésekkel nemcsak a fűtőelem-meghibásodás szempontjából fontos hasadási termékek aktivitás mérésére van lehetőség, hanem a korróziós termékek nagy része is gammasugárzó, melyek vizsgálata a zóna korróziós állapota szempontjából fontos.) A gamma-spektrometriás mérések után az alfasugárzó transzurán izotópok mérésére kerül sor. Ezek aktivitását a primervízet leszűrve a szűrők direkt alfa-spektrometriás mérésével határozzák meg. Az alfaaktivitás nagy részét általában a $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm és a ^{242}Cm izotópok okozzák.

A paksi reaktorok fűtőelemeinek állapotát a primervíz aktivitások alapján, kétféle módon is elemzik. A BME NTI-ben 1990-ben egy szakértői rendszert hoztak létre az amerikai EPRI (Electric Power Research Institute) ajánlása és a szovjet VVER-440-esre vonatkozó ajánlások alapján, s kritériumok vizsgálatával határozzák meg a fűtőelemek állapotát, míg a KFKI AEKI-ben egy szivárgási modellt fejlesztettek ki 1999-ben (kanadai modell adaptálásával, szintén az EPRI ajánlása alapján, felhasználva a VVER-440-es üzemeltetési, szivárgási jellemzőit. (Vajda, 1998), (Kerkápoly, 2002)

A fűtőelemek állapotának *kvalitatív* értékelése a ^{131}I , ^{133}I és a ^{134}I izotópok mérésén alapszik. A kvalitatív értékelés során az izotópok aktivitásának normál és tranziens üzemi mérései alapján megadható, hogy van-e hibás fűtőelem a zónában, és hogy a domináns hiba nagy valószínűséggel makro- vagy mikrohiba-e. Vizsgálható a hiba fejlődése és a felületi szennyezettség is. A ^{131}I aktivitásának megnövekedése a fűtőelem-meghibásodásra utal, ezzel egyidejűleg a ^{134}I aktivitásának megnövekedése makro-hiba kialakulását jelzi. A kevésbé illékony hasadási ill. transzurán izotópok mérése a tranziens körülmények között a hibák pontosabb, biztosabb jellemzését szolgálja. (Vajda, 1999)

A fűtőelemek állapotának *kvantitatív* értékelése során meghatározható a hibás fűtőelemek száma a zónában, becsülhető a hibás fűtőelem kiégése, valamint a hiba mérete.

A hibás fűtőelemek számát a BME NTI-ben vízben stabil üzemben mért ^{131}I , ^{133}I és a ^{134}I izotópok aktivitáskoncentráció alapján határozzák meg, összevetve a mért értékeket az egy hibás fűtőelemhez tartozó standard értékekkel. A hiba típusát is kritériumtényező segítségével adják meg, a zóna felületi uránszennyezettségét standard szivárgási adatok alapján határozzák meg, míg a sérülés mérete a primervízbe került üzemanyag mennyiségéből becsülhető. A tranziens üzemben mért cézium izotópok aktivitásarányai ($^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$) alapján becsülhető a dominánsan hibás fűtőelem kiégettsége is, de a kiégés becsülhető egyes transzurán izotópok aktivitásarányai alapján. A kiégés becsléshez felhasználható transzuránizotóp arányok a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ arány ill. $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ arány, bár ez utóbbit jelentősen befolyásolják a reaktor üzemeltetési paraméterei. (Vajda, 2001)

Az AEKI-ben kidolgozott szivárgási modell két részből áll, tartalmaz egy stacioner és egy tranziens számítást. A stacioner számítás a mérésekből származó R/B (release-to-birth ratio), keletkezés/kibocsátás arányt számítja ki elsőként legalább három jód izotópra (esetenként a Xe ill. a Kr izotópokat is felhasználja), majd a szivárgási állandó meghatározásával becslést ad a hibás fűtőelemek számára, a hűtőközegben található urán mennyiségére és a hiba méretére. A normál üzemi számításoknál a paraméterek illesztéséhez simplex-optimum módszert használ. A tranziens üzemi számításokkal a ^{131}I viselkedését jelzik előre, az üzemeltetési körülmények miatt bekövetkező spiking-ot. A tranziens modellel figyelembe vehető a teljesítményváltoztatás, a bórsav koncentráció változásának és a nyomás csökkentésének hatása. (Hózer, 2003), (Vajda, 2001), (Hózer, 2001)

4.5.1. Hibás fűtőelemek kiégésének becslése az aktinidák aktivitásarányai alapján

A hibás fűtőelemek kiégésének becslése többnyire az oldatok, a primervíz elemzésével történik. Néhány esetben nemcsak az oldatok elemzésére kerül sor a fűtőelemek állapotának vizsgálatokor, hanem a részecskefrakciók mérése alapján is végeznek kiégés becsléseket. Míg az oldatok elemzésekor $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarányának meghatározása alapján történhet legegyszerűbben a hibás fűtőelemek kiégésének becslése, addig a részecskefrakciók, a szűrők vizsgálatokor a transzurán izotópok mérése válik fontossá. A transzurán nuklidok ugyanis kevésbé illékonyak, így nagy részük a részecskékhez kötött formában ill. a felületeken lerakódva jelenik meg szennyezőként a primerkörben. A fűtőelemek makrohibái (3.1.1 fejezet) esetén (ellentétben a mikrosérülésekkel) az üzemanyag nem illékony hasadási és aktiválási termékei, transzurán elemek is kijutnak a hűtőközegbe.

A hibás fűtőelemek kiégésének meghatározása az alfa-spektrometriás méréseket követően a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ill. a $^{242}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$, ill. a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ arányok meghatározásával történik. A kiégés becslése általában a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ill. a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok mérésével történik, mert ezek az arányok függenek leginkább csak a kiégéstől.

A kiégett fűtőelemekben levő aktinidák mennyiségének számítására sokféle program létezik. A Nukleáris Technika Intézetnél a kiégések becsléséhez elméleti értéként a Nessel-Nuko programcsomag alapján számolt adatokat veszik alapul, melyeket más programok eredményeivel is összehasonlítottak.

A fűtőelem-meghibásodások vizsgálata során a minták alfa-spektrometriás elemzésekor többnyire az Am, Cm, Pu és U izotópok mérésére kerül sor. A nuklidok jellemzői és az aktinidák keletkezésének sémái az üzemanyag kiégése során a mellékletben található (M20. ábra és M1. táblázat).

4.5.2. Aktivitásarányok a kiégés függvényében

Az egyes nuklidok mennyiségét nagymértékben befolyásolhatják a reaktor üzemeltetési paraméterei, ezért a kiégés becsléshez azok az izotópok használhatók fel leginkább, melyek függetlenek a reaktor üzemeltetési paramétereitől, s mennyiségük elsősorban a kiégéssel változik.

Az urán és transzurán izotópok koncentrációját a fűtőelemek kiégése mellett az urán pasztillák kezdeti dúsítása, a bórsavkoncentráció, a fűtőelemek lineáris teljesítménysűrűsége, a reaktor teljesítményének időbeli változásai/története, a hűtési idő, stb. befolyásolhatja.

A fűtőelem tabletták kezdeti dúsítása leginkább a ^{244}Cm izotópok aktivitását befolyásolja, s legkevésbé a ^{238}Pu izotóp mennyiségét. A ^{239}Pu és ^{241}Am aktivitására nagy kiégésnél nagyobb a hatása a kezdeti dúsításnak, mint kis kiégéseknél.

A bórsavkoncentráció hatása a n-spektrum energialeoszlásában mutatkozik meg. Magas bórsavkoncentráció mellett nagyobb a keletkező Pu izotópok (valamint általában a többi aktinida izotópok) mennyisége is. Ennek oka, hogy a neutronok energiája a magasabb energiák felé tolódik el (a ^{10}B termikus neutron abszorpciója miatt), s így nő ^{238}U -cal végbemenő gyorsneutronos reakciók aránya.

A fűtőelem lineáris hőteljesítménye leginkább a ^{241}Am és a ^{242}Cm aktivitását befolyásolja (akár 50%-al is). A lineáris hőteljesítmény változása azoknak a nuklidoknak a mennyiségére van hatással, melyek keletkezése erősen függ valamilyen másik nuklid képződésétől.

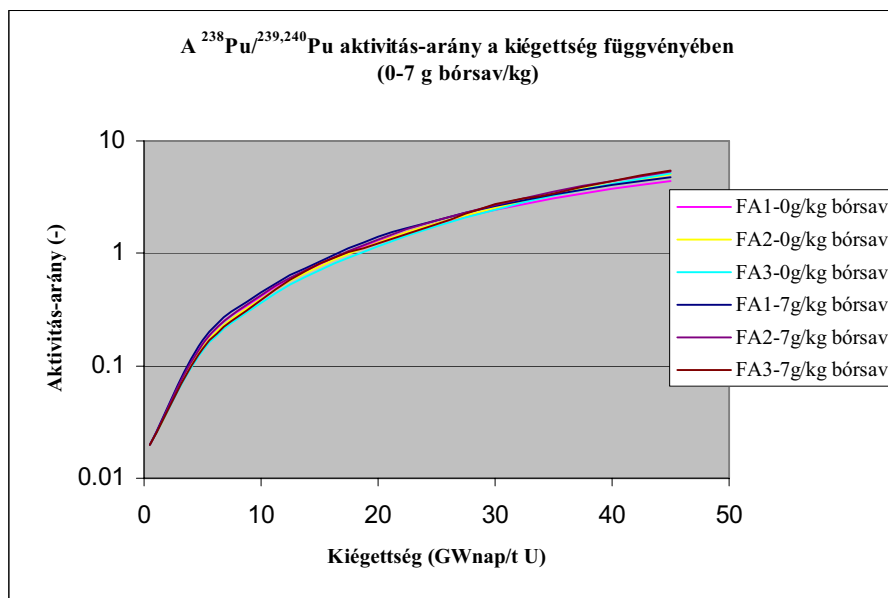
A reaktor teljesítményének időbeli változása a hőteljesítményen és a hűtési időn keresztül befolyásolhatja mennyiségeket. Általában a rövid felezési idejű nuklidok mennyiségét befolyásolja erősen.

Az izotópok koncentrációját a hűtési idő során a radioaktív bomlások és a transzmutáció befolyásolja. A hűtési idővel a ^{239}Pu és a ^{240}Pu mennyisége nem változik, a ^{242}Cm és a ^{244}Cm aktivitása a bomlásukból adódóan csökken, míg a ^{241}Am koncentrációja hűtés során nő. A ^{238}Pu koncentrációját a ^{242}Cm transzmutációja és a radioaktív bomlás befolyásolja.

A fentiek értelmében a hibás fűtőelemek kiegészésének becslésére leginkább a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ill. a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ arányok alkalmasak, mivel ezek függenek leginkább csak a kiegész mértékétől. A ^{242}Cm és a ^{241}Am mennyiségét nagymértékben befolyásolják az üzemeltetési paraméterek (pl.: a lineáris teljesítménysűrűség, a reaktor teljesítményének időbeli változása), ezért a kiegész becslésre csak nagy bizonytalansággal használhatók fel.

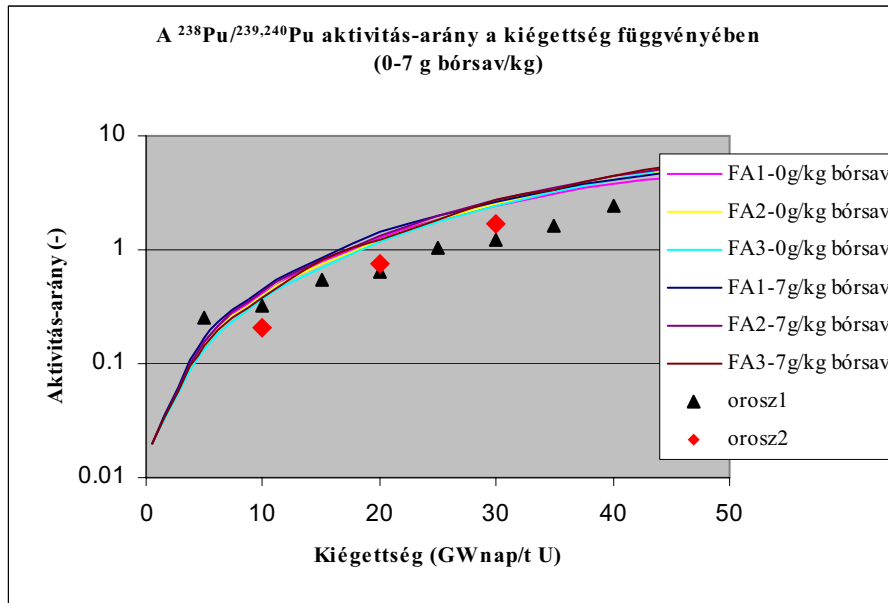
Az elméleti kiegészi görbék meghatározásakor a Nessel-Nuko programcsomaggal figyelembe vehető a fűtőelem kezdeti dúsítása valamint a bórsav koncentráció. (Alapesetben a paksi számításokhoz a lineáris hőteljesítmény értékét 125 W/cm-nek, fűtőelem hőmérsékletét 970 K-nek, a moderátor hőmérsékletét 558 K-nek, a moderátor sűrűségét 0,754 g/cm³-nek veszik.) (Vajda, 1994)

A 4.1. ábra a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányt mutatja a kiegész függvényében a Nessel-Nuko programcsomag alapján. Látható, hogy a bórsavkoncentráció (0 ill. 7 g/kg), és a fűtőelem kezdeti dúsítása nem befolyásolja nagymértékben az aktivitásarányt. Az FA1 1,6%-os, az FA2 2,4%-os, az FA3 3,6%-os kezdeti dúsítást jelent az ábrán. (Möller, 1987)



4.1 ábra A $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitás-arány a kiégettség függvényében (Möller, 1987)

Összehasonlításképp két orosz számítást is bemutatunk a 4.2 ábrán. Az orosz1 számítás (Oroszországi „Kursatov Intézet” Tudományos Központ Nukleáris Reaktorok Intézete, 2004) a TVS-M programmal készült (a dúsítás, bórsavkoncentráció értékek nem ismertek), míg az orosz2 számítások (az UNIRASZOSZ program eredményei) 3,6%-os dúsítású fűtőelemekre vonatkoznak (Kolobaskin, 1983). Látható, hogy az eltérő módon végzett számításokkal kapott függvényalakok hasonlóak, bár az értékek eltérnek egymástól. A BME NTI-ben a Nessel-Nuko programcsomaggal kapott eredményeket használják fel a kiegész becslésekhez, mivel az orosz adatok hiányosan ill. sok esetben csak pontatlanul hozzáférhetőek. A Nessel-Nuko program hibáját a szerzők kb. 20%-nak adják meg, míg az orosz számításokhoz nincs megadva bizonytalanság. (Vajda, 1994), (Kolobaskin, 1983)



4.2 ábra A $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitás-arány a kiégettség függvényében a kétféle orosz számítás ill.a korábbi Möller számítás szerint

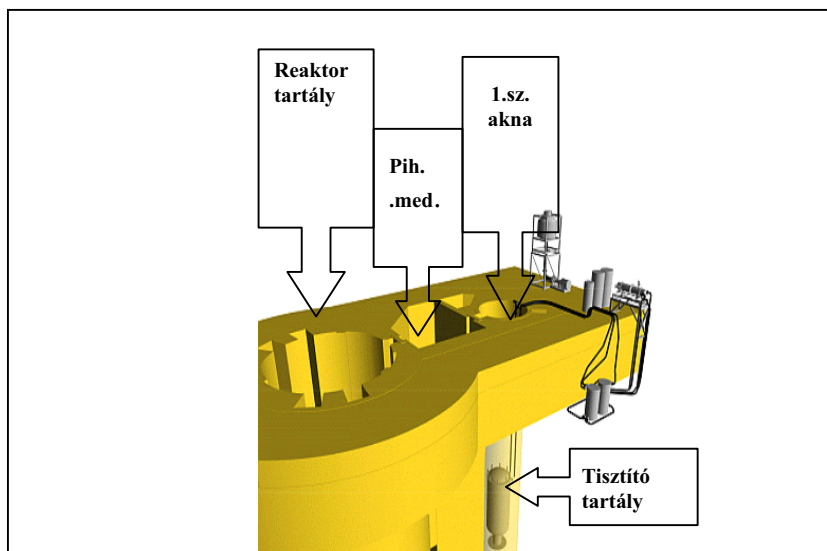
5. Nem környezeti mintákban jelenlevő forró részecskék - üzemzavari forró részecskék

5.1. Üzemzavari részecskék, forró részecskék kikerülése a paksi, 2003. áprilisi üzemzavara során

A reaktor hűtőközege, a pihentető medence hűtővize nemcsak normál üzemi körülmények között szennyeződhet kisméretű fűtőelem törmelékkel, korróziós részecskékkel. Elképzelhetőek olyan események, üzemzavarok, melyek során a hűtővíz nemcsak a fűtőelemek mikro- ill. makro-meghibásodása következtében szennyeződik.

2003. áprilisában a paksi atomerőmű 2. blokkjánál az INES skála szerinti besorolásnak megfelelően súlyos üzemzavar történt. Az üzemzavar egy fűtőelem tisztítási művelet során következett be, melynek következtében kb. 800m³ víz szennyeződött. A tisztítási művelet során a 2. blokk melletti 1.sz. aknába helyezett Siemens-Framatome gyártmányú tisztító tartályban, az elégtelen hűtés miatt mintegy 30 fűtőelem köteg sérült meg.

A tisztítótartályba helyezett fűtőelem kötegeket a CORD-UV eljárás szerint oxálsavas lemosással tisztították meg a felületen lerakódott korróziós rétegtől, melyet az oxálsav UV-fényes elbontása követett. A tisztítási eljárás során konstrukciós hiba miatt bekövetkező elégtelen hűtés, valamint az azt követő hőszokk miatt sérültek meg a fűtőelemkötegek, elszennyezve ezzel a 1.sz. akna és a vele egybenyitott pihentető medence valamint a 2. blokk reaktorának vizét. A sérült fűtőelemekből az illékony hasadási termékek mellett (pl.: ⁸⁵Kr, ¹³¹I), nem illékony hasadási termékek (pl.: ¹⁴¹Ce, ¹⁴⁴Ce, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰La), valamint urán és transzurán izotópok is kikerültek a hűtőközegbe. A kikerült aktivitás egy része oldott, másik része részecske formában jutott ki a hűtőközegbe. Az 5.1. ábrán az üzemzavar helyszíne látható.



5.1 ábra az üzemzavar helyszíne a 2. bloknál (www.npp.hu)

Az üzemzavar értékelése, a víz elemzése mellett ebben az esetben is értékes információk szerezhetők a kikerült, egyedi részecskék mikro- és radioanalitikai vizsgálatával. A kikerült részecskék, fűtőelem fragmentumok vizsgálatával a sérülés mértékére, a kikerült részecskék oldódási folyamataira, a részecskék kiégésére, méretére következtethetünk.

5.2. Az üzemzavar feltételezett lefolyása a fűtőelem-sérülés szempontjából

A fűtőelem-sérülés mértékét (melyre még csak becslések vannak) alapvetően meghatározta az üzemzavar lefolyása, hőtani jellemzői. Az üzemzavar körülményeire, a lehetséges eseménysorra az üzemzavart követő kamerás vizsgálatok eredményiből, a kibocsátási adatokból ill. a modellszámításokból lehet következtetni. Az üzemzavar részleteinek tisztázására több kutatóintézetnél folynak kutatások (BME NTI, KFKI AEKI). (Aszódi, 2003), (Hózer (2), 2003), (Vajda, 2004)

A kamerás vizsgálatok tapasztalatai, a mért kibocsátási adatok, valamint a modellkísérletek eredményei alapján az üzemzavar a fizikai folyamatok szempontjából feltehetően négy szakaszra osztható: (Aszódi, 2003)

- hűtővíz-felmelegedés és -kiforrás
- üzemanyag túlhevülés és a pálcák felfűvódása
- magas hőmérsékletű oxidáció és elridegedés
- elárasztás, mechanikai tönkremenetel

A videófelvetelek, valamint a termohidraulikai modellszámítások alapján feltételezhető, hogy az üzemanyag hőmérséklete nem haladta meg jelentősen az 1200⁰C-ot. Olvadásra utaló jelek sem az acél szerkezeti elemeken, sem a fűtőelemeken nem látszóttak a videófelveteleken. A kazettafalak erősen oxidálódtak, míg a fűtőelemrudak kevésbé oxidáltak. A rudak törése azonban a burkolat ridegedésére utalhat. A kazetták egy része valószínűleg a hő hatására (800-900⁰C-on) felfűvődött, esetleg közvetlenül felrepedt, majd a sérült feltehetően túlhevült burkolat az 1000-1200⁰C-os hőmérséklet mellett erősen oxidálódott és elridegedett. Az üzemzavar végső részében, a tartályfedél felnyitása után, az elárasztáskor a hősokk következtében az elridegedett fűtőelemkazetták megsérültek, összetörték. (Aszódi, 2003), (Hózer (2), 2003)

5.3. Az üzemzavart követő aktivitás-kibocsátások

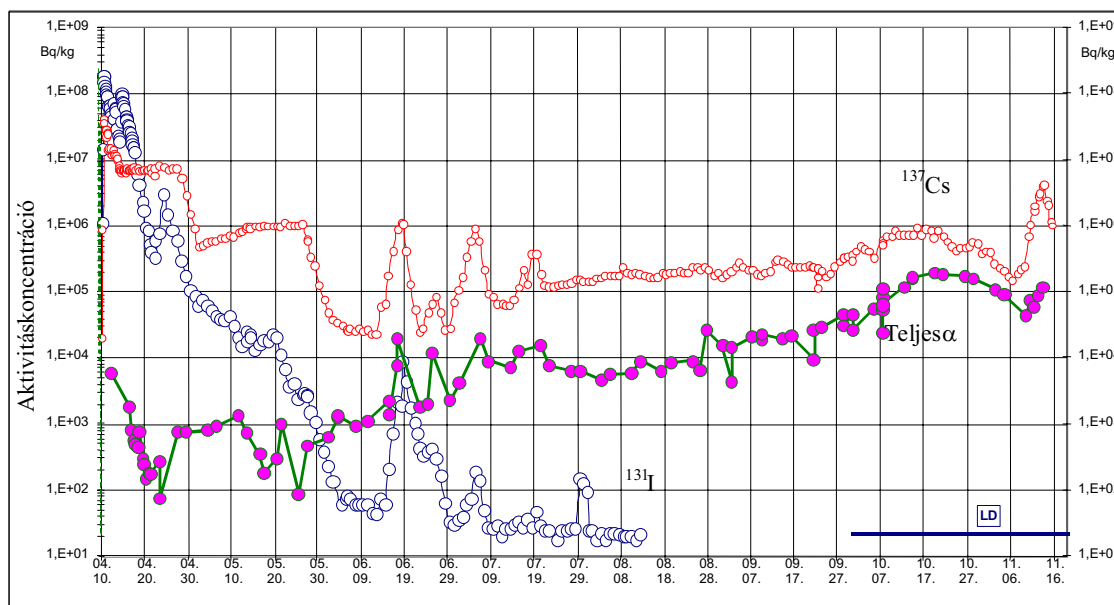
Az üzemzavart követő két hét integrális vízbe történő kibocsátás adatait foglalja össze az 5.1 táblázat, valamint tartalmazza a kéményen keresztül történt integrális kibocsátást az első hónapra. A kéményen keresztüli kibocsátás általában elhanyagolható volt a vízbe történő kibocsátás mellett, kivéve a nemesgázokat, ahol a két kibocsátás összemérhető. (A ^{85m}Kr és a ^{131m}Xe a vízben pontatlanul volt mérhető, mivel kisgyakoriságú gamma vonallal rendelkezik, ezért ennél a két izotópnál a kéményen keresztüli kibocsátás alapján becsülték a víz aktivitását.)

	Kibocsátás a fűtőelemből (Bq)	Mérés helye	Kibocsátás a leltárhoz viszonyítva (%)
Nemesgáz	4*10 ⁴	Kémény	0,4
Jód	1*10 ⁴	Pihentető medence+kémény	0,08
Cézium	3*10 ¹³	Pihentető medence	0,3

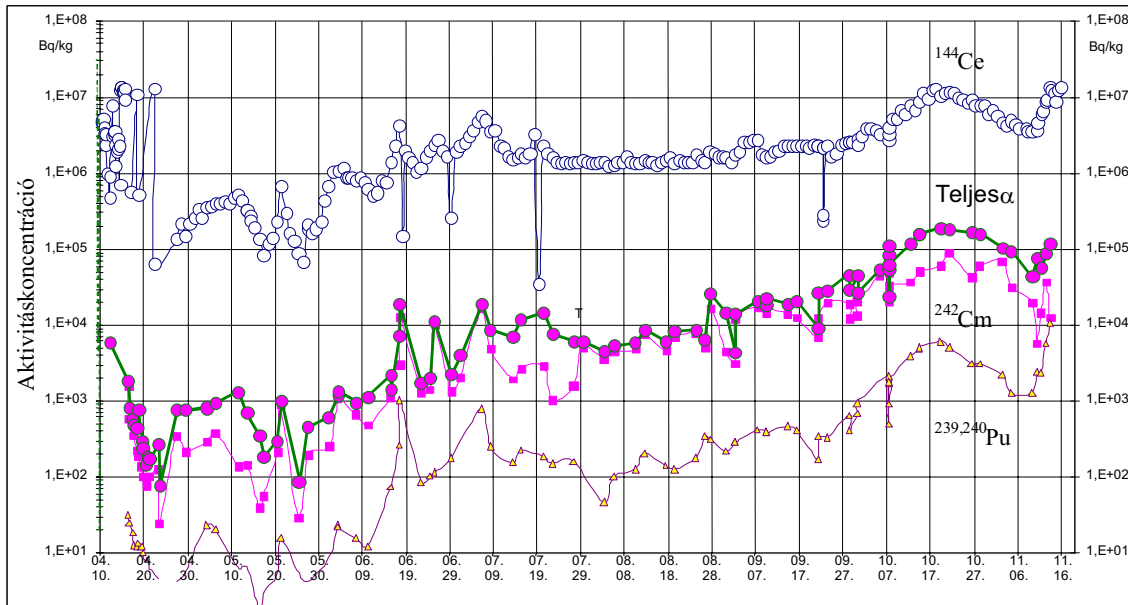
5.1 táblázat Mért kibocsátás a fűtőelemekből és számított részarány (Hózer, 2003)

A nemesgáz kibocsátás egésze a fűtőelemben felhalmozódott mennyiségnek felel meg (ugyanis VVER-440-es reaktoroknál a normálüzem során a hasadási gázoknak csak néhány tized százaléka kerül ki a tablettából). A viszonylag alacsony jód és cézium kibocsátás arra utal, hogy csak a burkolat alatti részből került ki az aktivitás, tehát a tabletták többsége ép maradhatott. (Hózer (2), 2003)

A pihentető medencében mért aktivitásokat mutatja a következő két ábra, az üzemzavart követő időszakban (2003. április és november közötti időszak).



5.3 ábra A pihentető medencében mért ¹³⁷Cs, a ¹³¹I és a teljes alfaaktivitás (Vajda, 2003), (Vajda, 2004)



5.4 ábra A pihentető medencében mért ^{144}Ce , a ^{242}Cm , $^{239,240}\text{Pu}$ és a teljes alfaaktivitás (Vajda, 2003), (Vajda, 2004)

Az üzemzavart követő időszakban a magas aktinida koncentrációk kezdetben gyorsan csökkentek. Nem világos, hogy ez csak az ioncserélő szűrők hatása volt-e, vagy jelentős kiülepedés is történt. A május vége óta megfigyelhető fokozatos növekedés a sérült kazettákból származó urán/transzuránok oldódásának a következménye. A ^{131}I esetében a csökkenés részben a víztisztítóknak (anioncserélőknek), részben a rövid felezési időnek (8 nap) tulajdonítható. Látszik az ábrából, hogy a hosszú felezési idejű ^{137}Cs -nak is van utánpótlása. Amikor a kationcserélő gyanta nem üzemel, akkor a ^{137}Cs aktivitás jelentősen emelkedik, ami a görbén aktivitáscsúcsként jelentkezik. A kationcserélő stabil üzemére – májustól novemberig – a ^{137}Cs koncentráció fokozatosan emelkedett. Az 5.4 ábra a teljes alfaaktivitás (urán + transzuránok) megoszlását mutatja a főbb összetevők, a ^{242}Cm és a $^{239,240}\text{Pu}$ között. Összehasonlításképp szerepel az ábrán a kúriummal nagyobb fokú kémiai hasonlóságot mutató, gammasugárzást kibocsátó ^{144}Ce is. (Vajda, 2003), (Vajda, 2004)

III. Kísérleti rész

6. Kísérleti munka bevezetése

A PhD munkám kísérleti részének tárgya olyan összetett módszer kidolgozása volt, mely elsősorban a paksi atomerőmű reaktorainak hűtővizében található forró részecskék azonosítását, elkülönítését, majd minél sokoldalúbb vizsgálatát teszi lehetővé. A szakirodalomban a reaktorok hűtővizéből elkülönített részecskék tulajdonságairól, vizsgálatáról nem születtek eddig publikációk, így a primerkörü részecskék vizsgálatára szolgáló összetett módszer alapját az eddigi környezeti (csernobili balesetből, légköri robbantásokból ill. egyéb nukleáris események során kikerült) forró részecskék elemzése jelentették.

Elsőként a paksi 3-as blokk primervizéből szűréssel eltávolított részecskéket elemeztem, mellyel céloom a fűtőelem-meghibásodások tanulmányozása volt. A részecskéket film autoradiográfiával különíttem el, majd az egyedi részecskék, részecskehalmazok elemi összetételét, morfológiáját, méretét pásztázó elektronmikroszkóppal vizsgáltuk*. Aktivitásukat direkt gamma- ill. alfaméréssel határoztam meg. A részecskék roncsolásmentes vizsgálatait a részecskék alfa-spektrometriás elemzése követte, amely során a részecskékben mérhető (fűtőelem-meghibásodással kapcsolatos) transzurán izotópok és uránizotópok aktivitását határoztam meg. A részecskékből az alfasugárzó Am, Cm, Pu és U izotópokat kromatográfiás extrakcióval (dipentil-pentilfoszfónáttal) választottam el. Az alfa-spektrometriás mérések eredményeként a részecskék kiégését kívántam megbecsülni.

A primerkörü részecskék vizsgálatára kidolgozott összetett eljárással a későbbiekben a 2003-as paksi üzemzavar következtében kikerült (vízmintákból ill. dörzsmintákról elkülönített) forró részecskék vizsgálatára is sor került az üzemzavarban sérült fűtőelemek állapotának megismerése céljából.

A kidolgozott módszerek sokoldalúságát bizonyítandó környezeti mintákban található forró részecskéket is elemeztem, a csernobili atomerőmű-baleset következtében szennyeződött mintákban (levegőszűrő, talaj) található forró részecskéket jellemeztem (mintegy a diplomamunkám kiegészítéseként), valamint természetes eredetű izotópokat tartalmazó (magas Th és meglepően magas U tartalmú) monazit homok részecskéit vizsgáltam.

A kísérleti munkámról szóló fejezet első részében (7. fejezet) a részecskék elkülönítéséhez kidolgozott autoradiográfiás módszert, az autoradiográfiás vizsgálatok kalibrációját ismertetem. Az ezt követő fejezetek tartalmazzák a normálüzemi primervizből elkülönített részecskék (8. fejezet) ill. a paksi üzemzavar következtében szennyeződött mintákból származó forró részecskék (9. fejezet) autoradiográfiás, elektronmikroszkópos ill. alfa-spektrometriás elemzéseinek eredményeit. A környezeti minták, környezeti mintákban található forró részecskék vizsgálatának eredményeit a 10. fejezetben foglalom össze.

* Az elektronmikroszkópos vizsgálatokért külön köszönettel tartozom Pintérné Dr. Csordás Tóth Annának (KFKI AEKI).

7. Autoradiográfia kalibráció

7.1. Autoradiográfia alkalmazhatóságának vizsgálata

A forró részecskék azonosítását többnyire film autoradiográfiával oldottam meg, mind a primerkörü, üzemzavari, mind a környezeti minták esetében.

A primerkörü szűrőmintákon található részecskék azonosítására legalkalmasabb filmet kalibrációs vizsgálatok során választottam ki. Az autoradiográfiához két fajta filmet vizsgáltam meg részletesen: a Fortepan 100 fekete-fehér magyar fotófilmet ill. a Konica gyártmányú zöldérzékeny fogászati röntgenfilmet. (Néhány esetben kipróbáltam egy Fujicolor színes filmet is.) A részecskék azonosítása, elkülönítése szempontjából fontos volt, hogy megismerjük a filmek tulajdonságait, alkalmazhatóságukat. Az autoradiográfiás technika kidolgozása során mindenképp el kellett sajátítani azokat a fényképezési eljárásokat, melyek lehetővé tették, hogy saját sötét laborunkban hívhassam elő a filmeket. Az elsődleges célom kezdetben a sugárzás detektálására alkalmas film kiválasztása, valamint a felvételek reprodukálhatóságának biztosítása volt. Ezt követték azok a vizsgálatok, melyekkel azt mutathattam ki, hogy az egyes filmek mely sugárzásra érzékenyek leginkább ill. mekkora az érzékenyséjük, felbontásuk.

A kalibrációs vizsgálatokkal igazoltam a felvételek reprodukálhatóságát, tanulmányoztam többféle film érzékenységét, kontrasztját, meghatároztam a filmek ezüst-bromid tartalmát. A kiválasztott film feketedését is vizsgáltam az exponálási idő ill. a minták alfa- és bétaaktivitásának függvényében.

7.2. Eszközök és módszerek

7.2.1. Filmek exponálása és előhívása

A filmek exponálása során a szűrőmintákat (melyeken a részecskéket előzetesen lakkal rögzítettem) eltérő ideig hozzászorítottam a filmek emulzióval borított feléhez, két üveglap közé helyezve, sötétben.

Az exponálást követően a Fortepan filmet az előhívók leírásának megfelelően hívtam elő. Az előhívás kezdetben Negafort papírhívóval történt (20°C-on, 3,5 percig), majd a készítmény gyártásának megszűnését követően, a filmek előhívásához Fortepan-Negafort univerzális fekete-fehér filmhez való hívót használtam (24°C-on, 4,5 percig). A fixáláshoz Reanal rögzítősót használtam (20°C-on, 3,5 percig), majd a termék megszűnése után Fortespeed univerzális fixir oldattal fixáltam a filmeket (20°C, 4 percig).

A Konica röntgenfilmet kezdetben röntgenfilmhez gyártott előhívóval próbáltam meg előhívni. TETANAL röntgenfilm előhívót (20°C, 2 perc) használtam az előhíváshoz és TETANAL SUPERFIX (20°C, 2 perc) röntgenfilm fixálót a fixáláshoz. A filmkidolgozó anyagok próbálgatása során azonban, tapasztalatom szerint a fényképezési filmekhez való előhívó és fixáló oldatot használva, a röntgenfilm is jobb minőségben (jobb felbontással) hívható elő. A későbbiekben (a filmek kalibrálása, valamint az autoradiográfiás vizsgálatok során) Fortepan-Negafort előhívó oldatot és Fortespeed univerzális fixir oldatot alkalmaztam a röntgenfilmek esetében is.

7.2.2. Feketedésmérés, a filmek kiértékelése

A filmek kiértékelése egy képfeldolgozó program segítségével történt. A felvételeket előhívás után egy síkgyas lapszkennel (HP Scanjet 5300C típusú, 300dpi felbontású szkennel) beolvastam, majd a digitális képről olvastam le az egyes képpontok feketedését egy program segítségével. A Photostyler nevű képfeldolgozó programmal a feketedés 0-255 közötti skálán mérhető. A skála szerint a 0 jelenti a legfeketébbet, míg a 255 a legvilágosabbat. A kép érdekes részeinek kiértékeléséhez minden esetben háttérkorrekciót alkalmaztam. A kép átlagos feketedését néhány pont feketedésének átlagából adtam meg, majd ebből levontam a film átlagos háttérfeketedését. Ezt a háttérrel korrigált feketedést (továbbiakban relatív (nettó) feketedést) használtam fel az autoradiográfiás felvételek kalibrációjához.

Az átlagos feketedés értékeket általában 11 (véletlenszerűen kiválasztott) pont feketedésének számtani átlagaként határoztam meg (kivéve nagyon kis méretű feketedés foltok esetén, ahol csak ennél kevesebb pont feketedésének leolvasására volt mód), a háttérfeketedés értékeket a filmnek mindig azon részéről olvastam le, ahol a felvételen nincs szűrőminta, és az átlagos háttérrel itt is 11 pont számtani átlagaként adtam meg.

A kép átlagfeketedését a minta helyén az alábbi módon kaptam meg:

$$\bar{K} = \frac{\sum_{i=1}^n K_i}{n} \quad (1)$$

ahol „ \bar{K} ” a kép átlagfeketedése a minta helyén, „ K_i ” az i-edik pont feketedése, „ n ” a pontok száma.

A háttér átlagfeketedését* az alábbi összefüggés adta meg:

$$\bar{H} = \frac{\sum_{i=1}^n H_i}{n} \quad (2)$$

ahol „ \bar{H} ” a háttér átlagfeketedése, „ H_i ” az i-edik háttérben levő pont feketedése, „ n ” a pontok száma.

A kép illetve háttér feketedésének empirikus szórását az alábbi összefüggésekkel kaptam meg:

$$\Delta K = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (K_i - \bar{K})^2}{n}} \quad (3)$$

$$\Delta H = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (H_i - \bar{H})^2}{n}} \quad (4)$$

ahol „ ΔK ” a kép feketedésének empirikus szórása, „ ΔH ” a háttér feketedésének empirikus szórása, „ \bar{K} ” a kép átlagfeketedése a minta helyén, „ K_i ” az i-edik pont feketedése, „ \bar{H} ” a háttér átlagfeketedése, „ H_i ” az i-edik háttérben levő pont feketedése és „ n ” a pontok száma.

A minta relatív (nettó) feketedését az alábbi egyenlet mutatja:

$$B = \bar{K} - \bar{H} \quad (5)$$

ahol „ \bar{K} ” a kép átlagfeketedése a minta helyén, „ \bar{H} ” a háttér átlagfeketedése.

A relatív feketedés szórását a hibaterjedésnek megfelelően az alábbi formula segítségével határoztam meg:

$$\Delta B = \sqrt{(\Delta K)^2 + (\Delta H)^2} \quad (6)$$

ahol „ ΔB ” a relatív feketedés szórása, „ ΔK ” a kép feketedésének empirikus szórása, „ ΔH ” a háttér feketedésének empirikus szórása.

7.2.3. Kalibráló források

Próbamérések radioaktív oldatokkal és szilárd halmazállapotú radioaktív porokkal

Az autoradiográfias vizsgálatok kalibrációját (a filmek érzékenységének vizsgálatát) elsőként ismert aktivitású (tisztá alfa- ill. béta-sugárzókat tartalmazó) standard oldatokkal szeretnénk volna megvalósítani. Membránszűrőkre cseppentettünk fel standard oldatokból, majd a szűrőkről autoradiográfias felvételeket készítettünk, azonban a cseppeket nem lehetett kellően kis területre koncentrálni a szűrőkön, ezért a források nem voltak alkalmas az autoradiográfias mérések kalibrációjához.

A kalibráló aktivitás koncentráltabb felvitelét szilárd halmazállapotú sugárzó anyagokkal is megpróbáltuk (uránacetátot ill. kálium-hidrogén-karbonátot vittünk fel 0,1 μm pórusú Millipore membránra, majd lakkal fixáltuk), azonban ez sem vezetett célra. Ezt követően a kalibrációhoz mikrolecsapásos technikával

* Az átlagfeketedést a fényképészetben alapfátyolnak nevezik.

készítettünk különböző radiokémiai eljárásokkal sugárforrásokat, melyek az aktivitást részecskeformában tartalmazták. Ezekkel a kalibráló forrásokkal már sikerült jól értékelhető autoradiográfiai felvételeket kapnunk.

Primerkörü szűrőminták és mikrolecsapásos technikával készített kalibráló források

Az autoradiográfiai vizsgálatok tényleges kalibrációjához ötféle, általam készített kalibráló forrást használtam fel. Az összes kalibráló sugárforrás mikroméretű részecskék formájában tartalmazta az aktivitást.

Végeztem kalibrációs méréseket egy olyan forrással, mely alfa-, béta- és gammasugárzó izotópokat vegyesen tartalmazott, valamint használtam közel tiszta alfa-, béta- és gamma-sugárforrásokat.

A kevert sugárforrást paksi 3-as blokki primervíz szűrésével nyertük. 420 ml primervizet szűrtünk át 0,4 µm pórusméretű Millipore membránon, az így keletkezett sugárforrás aktivált korróziós termékeket, hasadási termékeket ill. transzurán izotópokat tartalmazott. (Ennek a kalibráló forrásnak előnye, hogy a későbbiekben vizsgálendő mintákhoz nagyon hasonlított az összetétele, eredetéből adódóan.)

A reprodukálhatósági vizsgálatokhoz olyan (1liter) primervíz szűrésével kapott mintákat használtam, melyeken forró részecske is található volt és szintén tartalmaztak alfa-,béta- és gammasugárzó izotópokat egyaránt.

A tisztán csak alfasugárzó kalibrálóforrások legtöbbje Pu izotópokat tartalmazott eltérő aktivitásokkal. Ezek a Pu források szintén paksi primervízből származtak. A primervízből extrakciós kromatográfiával elválasztottuk a Pu-ot és NdF₃-os mikrocspadékos együtleválasztással készítettünk forrásokat, melyek alfa-aktivitását alfa-spektrometriával határoztuk meg. Az alfáforrásokat 0,2 µm pórusméretű teflonmembránra szűrtük. A források ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu és ²⁴²Pu izotópokat tartalmaztak, valamint ²⁴¹Pu-ot, mely lágy béta-sugárzó is. Készítettünk egy tisztán csak alfasugárzó izotópokat tartalmazó Am/Cm forrást is. A primervízből extrakciós kromatográfiával választottuk el az Am és a Cm-ot és NdF₃-os mikrocspadékos együtleválasztással készítettünk forrást, amely alfa-aktivitását alfa-spektrometriával határoztuk meg. A forrás ²⁴¹Am, ²⁴³Am, ²⁴²Cm, ²⁴⁴Cm izotópokat tartalmazott. (A ²⁴¹Am rendelkezik egy röntgenvonallal is.)

A tisztán béta-sugárzót tartalmazó kalibráló forrásokat standard ⁹⁰Sr oldat felhasználásával készítettük el, BaSO₄-os mikro-együtleválasztással. (20 ml 40% Na₂SO₄ oldathoz 0,25 ml BaCl₂ oldatot adtunk, mely 450 µg Ba-ot tartalmazott. A pH-t 10-esre beállítva egy óras várakozási idő után leszűrtük 0,1 µm-es pórusméretű Millipore membránra a mikro-cspadékot. A béta sugárforrások aktivitását folyadékszcintillációs mérés technikával ellenőriztük.

Gammasugárzó kalibráló forrásokat szintén BaSO₄-os mikro-együtleválasztással készítettünk standard ⁸⁵Sr oldatot felhasználva. A források aktivitását gamma-spektrometriával ellenőriztük.

A fent ismertetett kalibráló források jellemzőit a 7.1 táblázat foglalja össze.

Kalibráló forrás típusa	Forrás sugárzásának fajtája/ izotópok	Forrás/ források aktivitása	Forráskészítési mód, (felhasznált szűrő pórusmérete)	Felhasználás a kalibráció során
Forró részecskét nem tartalmazó, közel homogén aktivitás-eloszlású primerköri szűrő (szűrő jele: 3/6)	Vegyesen alfa-, béta és gammasugárzás/(aktivált korróziós termékek, hasadási termékek ill. transzurán izotópok)	Összaktivitás: $\sim 4 \cdot 10^4$ Bq	420ml primervíz átszűrése 0,4 μ m pórusméretű Millipore membránon	Érzékenység-vizsgálat, relatív feketedés-exponálási idő kapcsolatának vizsgálata.
Forró részecskét is tartalmazó primerköri szűrő (szűrő jele: 3/5)	Vegyesen alfa-, béta és gammasugárzás/(aktivált korróziós termékek, hasadási termékek ill. transzurán izotópok)	Összaktivitás: $\sim 2 \cdot 10^5$ Bq	1l primervíz átszűrése 0,4 μ m pórusméretű Millipore membránon	Reprodukálhatóság vizsgálata.
Alfasugárzó kalibráló-források	Alfasugárzás/(bétasugárzás) ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu és ^{241}Pu Alfasugárzás/(röntgensugárzás) ^{241}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm	0,2-4,5 Bq között 0,4 Bq	Pu, (ill. Am/Cm) izotópok elválasztása extrakciós kromatográfiával a primervízből, NdF_3 -os együtleválasztás, szűrés 0,2 μ m pórusméretű teflonmembránra	Érzékenység-vizsgálat, relatív feketedés-alfaaktivitás kapcsolatának vizsgálata. Érzékenység-vizsgálat.
Bétasugárzó kalibráló-források	Bétasugárzás/ $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$	Bétaaktivitás: 5-20 Bq között	BaSO_4 -os mikro-együtleválasztás, szűrés 0,1 μ m pórusméretű Millipore membránra	Érzékenység-vizsgálat, relatív feketedés-bétaaktivitás kapcsolatának vizsgálata.
Gammasugárzó kalibráló-forrás	Gammasugárzás/ ^{85}Sr	Gammaaktivitás: 0,3 Bq	BaSO_4 -os mikro-együtleválasztás, szűrés 0,1 μ m pórusméretű Millipore membránra	Érzékenység-vizsgálat.

7.1. táblázat A kalibráló források jellemzői, felhasználási területük

7.3. Kalibrációs mérések, a filmek vizsgálata

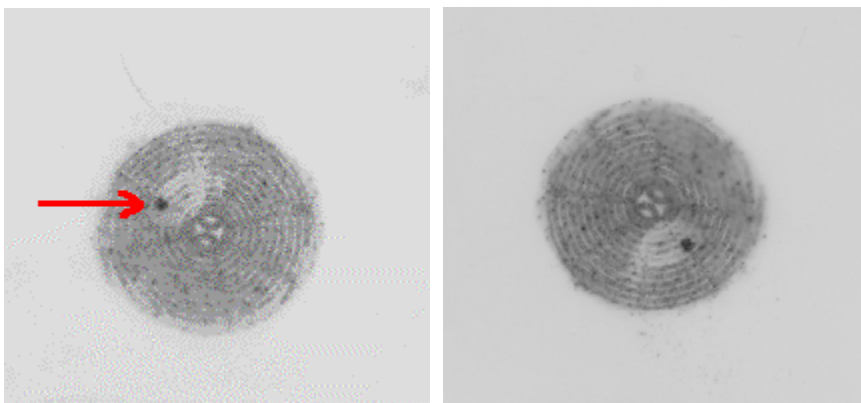
7.3.1. Reprodukálhatóság vizsgálata

Elsőként az autoradiográfias felvételek reprodukálhatóságát vizsgáltam meg. Több alkalommal ellenőriztem, hogy ugyanazon mintákról készített felvételek feketedése mennyire reprodukálható, ha az exponálási idő azonos. A Fortepan 100-as film reprodukálhatósági eredményeit mutatnám be részletesebben, mivel a későbbiekben több okból kifolyólag ez a film bizonyult használhatóbbnak. (Lásd a 7.3.2. és a 7.3.3. fejezeteket.)

A 7.2 táblázat példaként a paksi 3-as blokki 3/5 jelű szűrőmintán levő forró részecskék relatív feketedéseit tartalmazza azonos (24 órás) exponálási idővel, Fortepan 100-as filmmel, azonos előhívási technikával készített felvételek alapján. (A relatív (nettó) feketedés meghatározása során mindhárom felvétel esetében ezeknél a mintáknál a részecskék átlagfeketedését korrigáltam a filmek (szűrőmintát nem tartalmazó) háttérének átlagfeketedésével, a 7.2.2 fejezetben leírt módon. A 3/5 jelű szűrő adatai a kalibráló források jellemzőit tartalmazó 7.1 táblázatban találhatók.)

3/5A jelű részecske		3/5B1 jelű részecske		3/5B2 jelű részecske		3/15 jelű részecske	
Relatív feketedés	Szórása	Relatív feketedés	Szórása	Relatív feketedés	Szórása	Relatív feketedés	Szórása
159	8	158	8	151	10	154	9
157	7	156	7	153	6	156	11
156	8	158	6	154	6	154	8

7.2. táblázat Forró részecskék relatív feketedései 3 különböző felvételen



7.1.a-b. ábra A 3/5A jelű részecskét tartalmazó szűrő képe két autoradiográfias felvételen *

A felvételek alapján megállapítható, hogy a forró részecskék jól azonosíthatóak és elkülöníthetőek, a felvételek reprodukálhatók. A felvételek reprodukálhatósága kapcsán két dolgot kell megkülönböztetni. Egyrészt egymás után ugyanarról a mintáról készült felvételeken megtalálhatóak ugyanott, ugyanazok a forró részecskék, tehát a részecskék „helye” reprodukálható. A forró részecskéket tehát sikeresen rögzítem a szűrők felületéhez, a részecskéket nem veszítem el az autoradiográfias felvételek készítése során, tehát megbízhatóan különíthetők majd el a további mikro- és radioanalitikai vizsgálatokhoz. (A részecskék meglétét direkt gamma- ill. alfa-méréssel is ellenőriztem mindig a további vizsgálatok előtt.) Másrészt amint azt a 7.2. táblázat adatai is mutatják a részecskék okozta relatív (nettó) feketedés értékek is reprodukálhatóak a különböző, ugyanarról a részecskéről ugyanolyan típusú (de nem ugyanazon tekercs) filmmel készített autoradiográfias képeken.

A felvételeken látszik a szűrők mintázata, mely segítséget nyújthat a részecskék azonosításában. A relatív feketedés meghatározásával a részecskék pontosabban azonosíthatók, mint vizuális megfigyeléssel. Ennek a magyarázata az, hogy a képek hátterei igen eltérőek, ami a vizuális megfigyelésnél optikai csalódást eredményezhet, azonban a képek relatív (nettó) feketedése közel azonos. (Például 3/5A jelű forró részecskét tartalmazó felvétel esetén a háttérfeketedés átlagértéke 172-184 közé esett a különböző felvételeken, míg a szűrőn található forró részecskéké 15-28 közé, azonban a relatív feketedésértékek az összes felvétel esetén jó egyezést mutatnak.) A reprodukálhatóság-vizsgálatok rámutattak arra, hogy még azonos típusú filmek (de eltérő tekercsek) esetén is a háttér feketedése jelentősen eltérhet, ezért a feketedés meghatározásakor a háttérrel mindenképpen korrigálni kell.

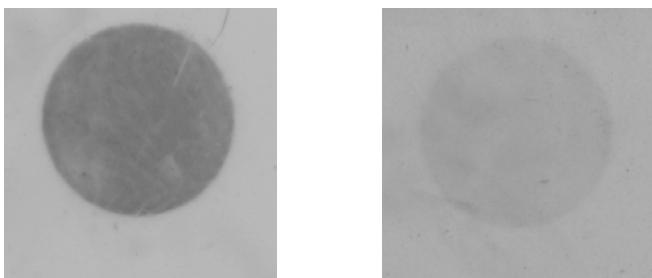
7.3.2. A filmek érzékenysége (kontrasztjának) összehasonlítása

A filmek érzékenysége (kontrasztjának) összehasonlítása során a Fortepan 100-as és a Konica röntgenfilmmel készítettünk felvételeket ugyanazon mintákról azonos exponálási idővel. A felvételeket azonos módon dolgoztam ki. A felvételeket olyan kalibráló forrással készítettem el, melyek az aktivitást közel homogén eloszlásban tartalmazta, nem tartalmazott forró részecskéket. A forrás (3/6) részletes leírását a 7.1. táblázat tartalmazta.

A Konica röntgenfilm relatív (nettó) feketedése az alfa-, béta- és a kevert sugárforrás esetében is kisebbnek bizonyult, mint a Fortepan film esetében. (A Konica film kontrasztját javítani lehetne a hívási idő vagy az exponálási idő növelésével.)

* Az első felvétel a forró részecske nyíllal történő megjelölése miatt vált szemcsésebbé, ezért a továbbiakban a részecskék pontos helyét nem jelölöm meg, a felvételek minőségének megőrzése érdekében.

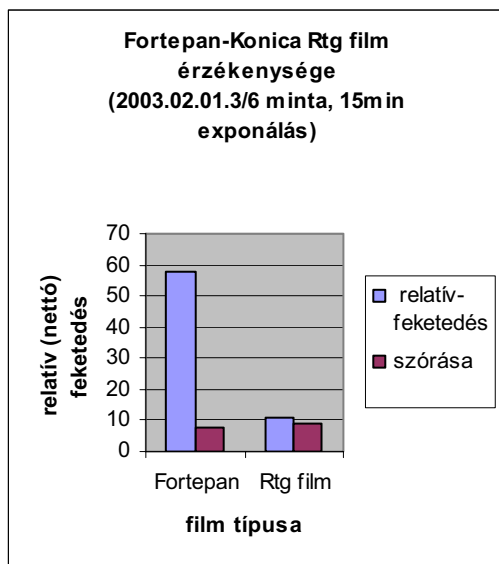
A felvételek összehasonlításképp 7.2.a és b ábrákon láthatók. Bal képen a Fortepan 100-al készített kép a 3/6-os mintáról 15 perces exponálással, jobb képen a Konica röntgenfilmmel kapott kép 15 perces exponálással.



7.2.a. (baloldali) ábra A 3/6-os szűrőről készült felvétel Fortepan 100-as filmmel

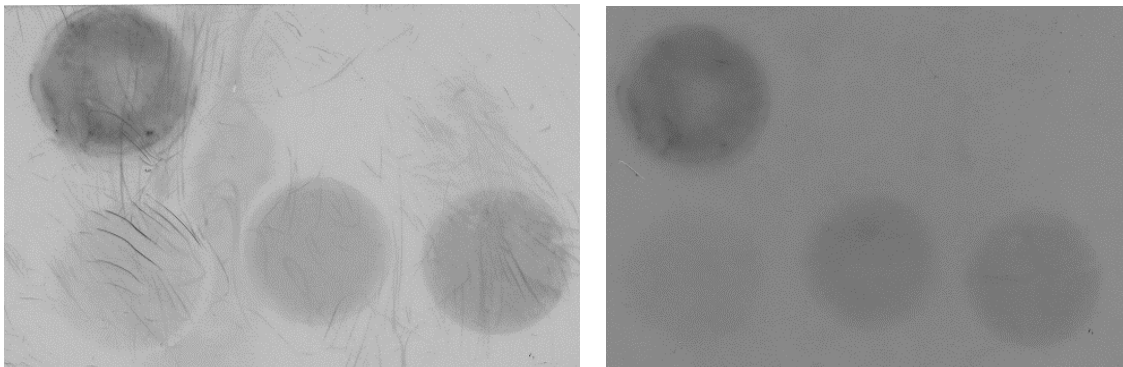
7.2.b. (jobboldali) ábra A 3/6-os szűrőről készült felvétel Konica röntgenfilmmel

A következő 7.3 ábrán a két 15 perces exponálási idővel készített felvétel relatív (nettó) feketedés értékei láthatók összehasonlításképpen a kevert sugárzást tartalmazó kalibráló forrásról, melyek Fortepan 100 ill. Konica röntgenfilmmel készültek. (A relatív (nettó) feketedés meghatározását a korábbiakkal azonos módon, a 7.2.2. fejezetben leírtak szerint végeztem.)



7.3. ábra A 3/6 szűrő relatív feketedése a Fortepan 100-as és a röntgenfilmes felvétel alapján (15 perces exponálással)

Másik példaként alfa, béta és gammasugárzó forrásokot tartalmazó mintasorozatról készített képek láthatók (7.4. ábrák), melyeket Fortepan és röntgenfilmmel készítettem, azonos exponálási idővel.

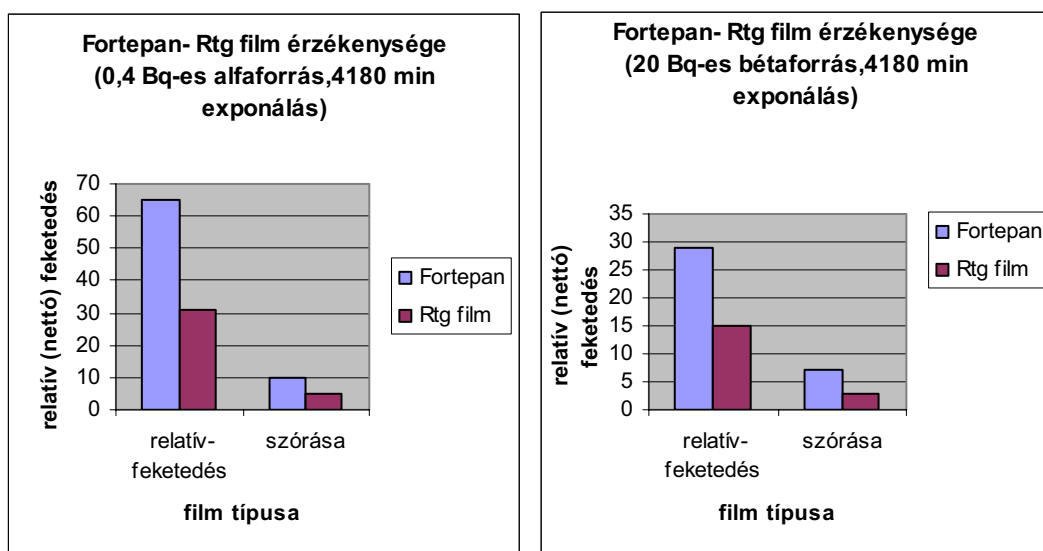


7.4.a. ábra (baloldali) ábra Alfa-, béta- és gammasugárzó kalibráló sorozatról készített felvétel Fortepan 100-as filmmel

7.4.b. ábra (jobboldali) Alfa-, béta- és gammasugárzó kalibráló sorozatról készített felvétel Konica röntgenfilmmel

A 7.4.a képen Fortepan 100-as filmmel, a 7.4.b ábrán Konica röntgenfilmmel készített felvétel látható egy alfa, béta és gamma-sugárzó forrásokat tartalmazó minta-sorozatról. Az exponálási idő 4180 perc volt. Balról jobbra a felső sorban mindkét képen egy 0,4 Bq aktivitású alfasugárzó Am/Cm forrás látható, ezt követné egy 0,3 Bq ^{85}Sr forrás képe (mely nem látható), ez a forrás közel tisztán gamma-sugárzó forrásnak volt tekinthető. Az alsó sorban balról jobbra 5-16-20Bq aktivitású, béta-sugárzó $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ sugárforrások képei láthatók mindkét felvételen. (A felvételen levő források adatai részletesen megtalálhatók a 7.1. táblázatban.)

A 7.5.a. és 7.5.b. ábra példaként a 20 Bq-es bétaforrás relatív feketedését ill. a 0,4Bq-es alfaforrás relatív feketedését mutatja a két film esetében. Mindkét forrás esetén a Fortepan100-as film bizonyult érzékenyebbnek az adott előhívási időkhöz. (A relatív feketedés meghatározását a korábbiakkal azonos módon, a 7.2.2 fejezetben leírtak szerint végeztem.)



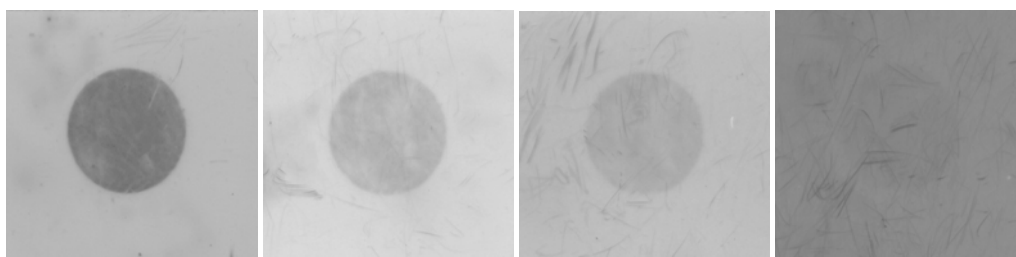
7.5.a ábra A 0,4 Bq aktivitású alfaforrás relatív feketedése a Fortepan- és a röntgenfilmmel készült felvétel alapján

7.5.b ábra A 20 Bq aktivitású bétaforrás relatív feketedése a Fortepan- és a röntgenfilmmel készült felvétel alapján

7.3.3. Érzékenység vizsgálat árnyékolással (abszorbens rétegekkel)

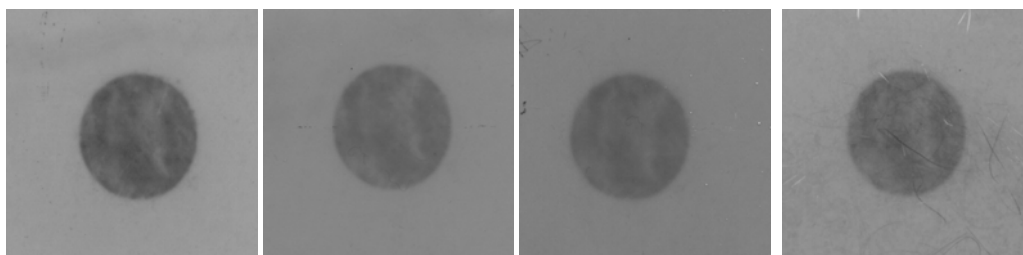
Annak eldöntésére, hogy a filmek milyen fajtájú radioaktív sugárzásra, milyen mértékben érzékenyek, elsőként árnyékolásos vizsgálatokat végeztem. A minta és a film közé nulla, egy, kettő vagy három réteg (~6,7 µm vastag) árnyékoló papírt helyeztem az exponálás során, majd az ugyanakkora exponálási idővel készített felvételek relatív feketedését hasonlítottam össze. A felvételekhez a kevert sugárzást kibocsátó primerkörű 3/6 jelű szűrőmintát használtam fel. (A forrás adatai részletesen megtalálhatók a 7.1. táblázatban.)

A következő ábrákon a Fortepan filmmel készített felvételek láthatók a kevert kalibráló forrásról (3/6 jelű szűrőről), nulla, egy, kettő ill. három abszorbens réteggel. Az exponálási idő 15 perc volt.



7.6.a-b-c-d ábra A 3/6-os szűrő Fortepan 100-as filmmel készített felvételei (balról jobbra) nulla, egy, kettő ill. három abszorbens réteggel, 15 perces exponálással

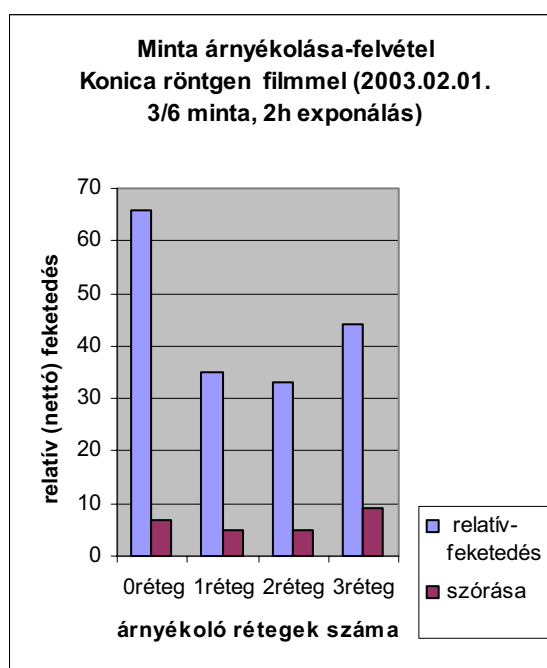
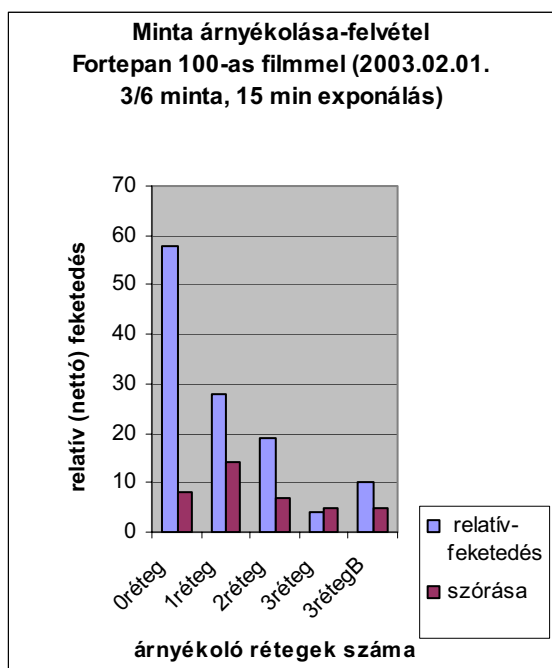
A következő ábrákon a Konica röntgenfilmmel készített felvételek láthatók a kevert kalibráló forrásról (3/6 jelű szűrőről), nulla, egy, kettő ill. három abszorbens réteggel. Az exponálási idő két óra volt.



7.7.a-b-c-d ábra A 3/6-os szűrő röntgenfilmmel készített felvételei (balról jobbra) nulla, egy, kettő ill. három abszorbens réteggel, 2 órás exponálással

A képeket összehasonlítva látható, hogy az árnyékoló rétegek számának növekedésével csökken a relatív feketedés. Ezeknél a felvételeknél is észrevehető, hogy a képek háttérfeketesége nagyon eltérő lehet. A jól értékelhető felvételek elkészítéséhez a Fortepan filmmel elég volt 15 percig exponálni, míg a Konica filmmel 2 óráig exponáltam, ami újra bizonyítja, hogy a Fortepan film érzékenysége nagyobb. A filmek kidolgozási módja azonos volt minden esetben. Látható, hogy az abszorbens rétegek hatása a Konica film esetében nem olyan jelentős, mint a Fortepan filmekkel készített képeknél, ez arra utal, hogy a Konica film érzékeny a gamma-sugárzásra is, (ami érthető, hiszen röntgenfilm). A Fortepan filmmel készített képek élesebbek voltak, mint a röntgenfilmmel készítettek, aminek ugyanaz az oka. (A gamma-érzékenység életlenedést okoz.)

A relatív feketedés meghatározását a korábbiakkal azonos módon, a 7.2.2 fejezetben leírtak szerint végeztem. A 3/6-os szűrő árnyékolásos vizsgálatának eredményeit mutatják a 7.8 ábrák. (A röntgenfilmmel készült ábrán a 3 réteggel készült felvétel értékelésénél érdemes a szórást is figyelembe venni.)



7.8.a. ábra A 3/6-os szűrő relatív feketedése az árnyékoló rétegek számának függvényében a Fortepan filmmel készített felvétel alapján*

7.8.b. ábra A 3/6-os szűrő relatív feketedése az árnyékoló rétegek számának függvényében a röntgenfilmmel készített felvétel alapján

* 7.8.a ábrán: 3 réteg árnyékolással két felvételt készítettem, erre utal az ábrán a 3réteg ill. 3réteggB elnevezés

7.3.4. A filmek ezüst-bromid tartalmának meghatározása

A szakirodalom szerint (2.1. fejezet) a röntgenfilmek érzékenyebbek a radioaktív sugárzásra, mint a hagyományos optikai filmek. Az általam elvégzett érzékenység vizsgálatok - amit a Fortepan 100-as fotófilmmel és a Konica röntgenfilmmel végeztem el - ennek épp az ellenkezőjét mutatták az adott exponálási ill. előhívási körülmények mellett. A filmek érzékenysége a filmek ezüst-bromid tartalmával van kapcsolatban, ezért meghatároztam az általunk tesztelt két film ezüst és bróm tartalmát. A filmek AgBr tartalmának meghatározása neutronaktivációs analízissel (NAA) történt a BME Oktatóreaktorában (BME NTI, 2003). Az ^{108}Ag (433keV) és a ^{82}Br (554keV) gammavonalait mértük és relatív módszerrel AgBr standardre vonatkoztatva végeztük el a mennyiségi meghatározást. Az alábbi táblázatban a mért Ag és Br tartalom látható tömegszázalékban.

	Fortepan 100	Konica röntgenfilm
Ag tartalom	2,8%	2,10%
Br tartalom	1,9%	1,39%

7.3. táblázat A Fortepan 100 és a Konica röntgenfilm Ag és Br tartalma tömegszázalékban

Az érzékenység vizsgálatokat a NAA mérési eredményei is megerősítették, a Fortepan 100 film magasabb ezüst és bróm tartalommal rendelkezik, habár a filmek érzékenységét nemcsak az AgBr tartalomtól függ, hanem kapcsolatban lehet a szemcsék méretével is. A Fortepan film jobb felbontása a filmek eltérő vastagságával magyarázható, a Fortepan film vastagsága kb. fele a Konica röntgenfilm vastagságának.

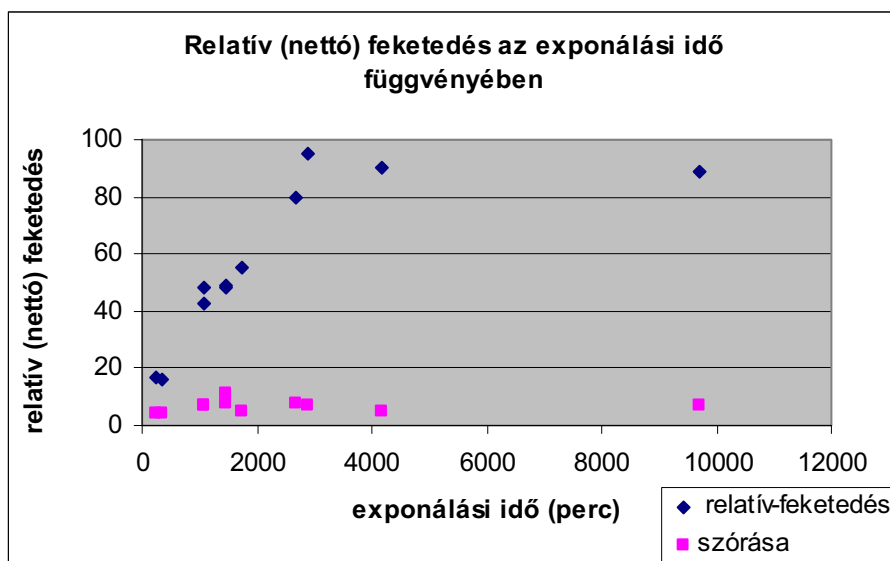
A ezüst-bromid tartalmat összehasonlításképp meghatároztuk egy színes film esetében is, az általunk vizsgált Fujicolor film 8,8 t% Ag-öt és 4,9 t% Br-ot tartalmazott. Dacára a színes filmek nagy érzékenységének az autoradiográfias vizsgálatainkhoz nem lett volna célszerű színes filmet választani, nehézkesebb előhívási eljárás miatt. (A színes film előhívását saját fotólaborunkban nem lehetne megoldani, valamint a színes filmek jóval érzékenyebbek a kidolgozási körülményekre, mint a fekete-fehér filmek.)

Az érzékenység vizsgálatok eredményei, a jobb felbontás, valamint gazdasági tényezők miatt a további kalibrációs vizsgálatokat már csak a Fortepan filmmel végeztem el.

7.3.5. A relatív feketedés és az exponálási idő ill. a minta aktivitásának kapcsolata

A relatív (nettó) feketedést az exponálási idő valamint a minta alfa ill. béta aktivitásának függvényében a Fortepan 100-as film esetében határoztam csak meg, mivel a korábbi vizsgálatok alapján ez a film bizonyult használhatóbbnak a későbbi forró részecske azonosításokhoz.

A relatív feketedés görbét az exponálási idő függvényében a kevert kalibráló forrással (3/6 jelű szűrő) vettük fel, mely összaktivitása $\sim 4 \cdot 10^4$ Bq. (A forrás adatai részletesen megtalálhatók a 7.1 táblázatban.) A 7.9. ábra a relatív feketedését mutatja az exponálási idő függvényében.

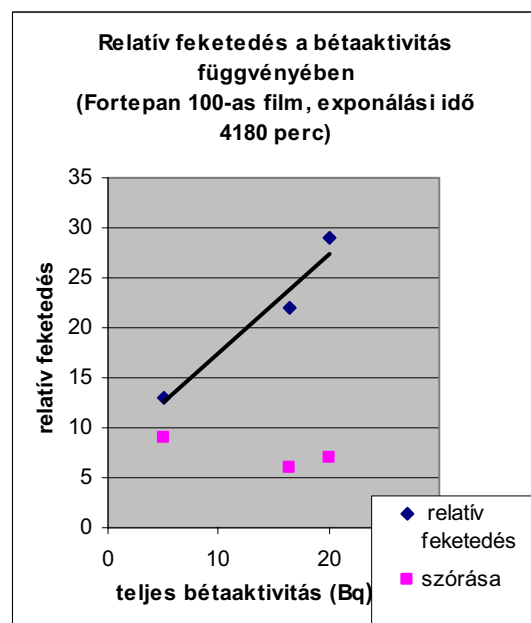
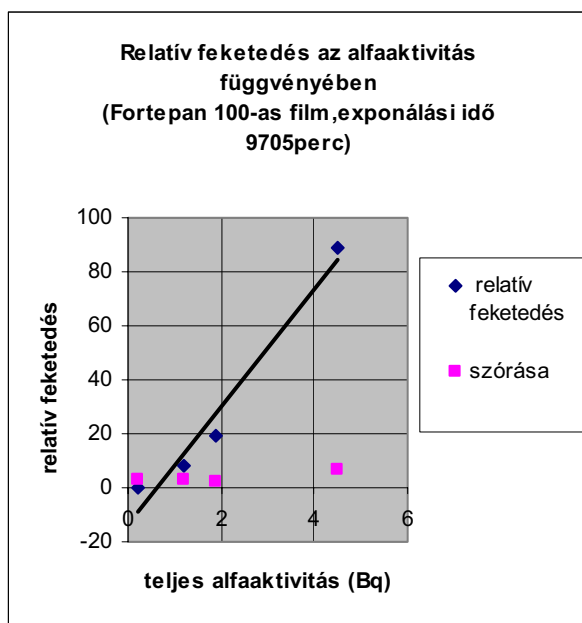


7.9. ábra A 3/6 jelű szűrő relatív feketedése az idő függvényében

A 7.9. ábrán látható, hogy a relatív feketedés kb. a 4-5000 perces exponálásig arányos az exponálási idővel, majd ezt a küszöböt elérve a feketedés telítésbe megy át.

Megvizsgáltam a Fortepan film relatív feketedését az alfaaktivitás függvényében, ismert alfaaktivitású (Pu izotópokat tartalmazó) szűrőminták segítségével. A kalibráló források hasonló arányokban tartalmazták az alfasugárzó izotópokat, azonos eredetűek voltak (reaktorvízből elválasztott források voltak). (Kis mennyiségben tartalmaztak a források ^{241}Pu -ot is, mely gyenge béta-sugárzó, azonban a forrás közel tisztán alfasugárzóknak tekinthetjük.) A kalibráló minták aktivitása 0,2-4,5 Bq közötti, s közel homogén eloszlásban tartalmazták az aktivitást. (A források adatai részletesen megtalálhatók a 7.1 táblázatban.) A 7.10. ábra a Fortepan film relatív feketedését mutatja az alfaaktivitás függvényében (9705perces exponálási idő mellett). Látható, hogy a vizsgált alfaaktivitások esetében a relatív feketedés közelítőleg arányos a források aktivitásával és a szórás közel állandó.

A Fortepan 100-as film relatív (nettó) feketedését meghatároztam a bétaaktivitás függvényében is. A vizsgálathoz $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, béta-sugárzó izotópokat tartalmazó szűrőmintákat használtam kalibráló forrásokként, melyekben a két izotóp már egyensúlyban volt. A források teljes bétaaktivitása 5-20 Bq közti volt, s a források aktivitása közel homogén eloszlású volt. A felvett függvény alapján (7.11. ábra) a béta-források esetében is látható, hogy a vizsgált aktivitás- tartományban a relatív feketedés és a bétaaktivitás közelítőleg arányos egymással.



7.10. ábra (baloldali) A Fortepan film relatív feketedése az alfaaktivitás függvényében

7.11. ábra (jobboldali) A Fortepan film relatív feketedése a bétaaktivitás függvényében

A filmek érzékenysége jól jellemezhető a relatív feketedés (B) és az exponálás (E) hányadosával is. A B/E hányadost az alábbi kifejezéssel kaphatjuk meg:

$$\frac{B}{E} = \frac{B}{A * t} \quad (7)$$

ahol „B” a relatív (nettó) feketedés, „A” az aktivitás, t az exponálási idő, „E” az exponálás (ami az aktivitás és az exponálási idő szorzata).

A fenti két ábrának megfelelően a B/E érték az alfaforrások esetében $1,8 \cdot 10^{-3}$ 1/Bq*perc, míg béta források esetében ennek az értéke csak $6,9 \cdot 10^{-4}$ 1/Bq*perc. A B/E hányadosokból is jól látszik, hogy a vizsgálatokhoz kiválasztott Fortepan 100-as film érzékenyebb az alfasugárzásra, mint a bétára. Az alfaaktivitás ismeretében egy kevert sugárzást tartalmazó minta autoradiográfias vizsgálatához megbecsülhető egy minimálisan szükséges exponálási idő, mivel a relatív feketedés szinte független az alfaenergiától (az

alfasugárzás kis hatótávolsága miatt). Egy jó minőségű autoradiográfias felvételhez (relatív feketedés a minta helyén ~20-30) az E/B hányadosnak 15000-20000 1/Bq*perc közé kell esnie.

7.4. Az autoradiográfia kalibrációjának konklúziói

A vizsgálatokkal kimutattuk, hogy a vizsgált filmek jól használhatók vékony minták autoradiográfijához, a kidolgozott autoradiográfias technikával jól reprodukálható, jól kiértékelhető eredmények kaphatók. A mérések szerint a Fortepan100-as filmmel jobb felbontású és nagyobb érzékenységű képek készíthetők, mint a Konica röntgen filmmel. A Fortepan film nagyobb érzékenységét a nagyobb ezüst-bromid koncentráció okozza, amint azt a NAA mérések eredményei is mutatták, a jobb felbontás pedig a kisebb rétegvastagságnak tulajdonítható.

A kalibráló forrásokkal végzett méréseknek az eredményeként megállapítható, hogy a filmek legérzékenyebbek az alfasugárzásra, ami az alfasugárzás kis hatótávolságával és nagy fajlagos ionizációs képességével magyarázható. A filmek érzékenyek a béta-sugárzásra, de a Fortepan film nem érzékeny a gamma-sugárzásra. A Fortepan film jól használható a minták inhomogenitásának, aktivitás-eloszlásnak vizsgálatára, valamint a mintákban található forró részecskék elkülönítéséhez, de a minták aktivitáskoncentrációjának pontos becslésére nem alkalmas. A digitalizált képek felbontását alapvetően a használt szkennerek felbontása határozta meg, az általunk használt rendszerrel elméletileg az egymástól 0,2 mm-re levő feketedések választhatók szét. Az objektumok (forró részecskék) tényleges elkülöníthetőségének pontosabb meghatározása nem képezte vizsgálataink tárgyát, mivel a részecskék elkülönítéséhez mikromanipulátoros rendszer nem állt rendelkezésünkre.

8. Normálüzemi vizsgálatok

8.1. Normálüzemi vizsgálatok során elemzett minták

Doktori munkám során elsőként normálüzemi primerkörü minták vizsgálatára került sor. A Paksi Atomerőmű Rt.-vel együttműködve volt lehetőségem a paksi (2-es ill.) 3-as blokk hűtővizének vizsgálatára.

Munkánk során általában a hűtővizből szűrővel elkülönített részecskék egyedi vizsgálatát valósítottuk meg különböző analitikai módszerek kombinálásával, hogy minél részletesebb információt kapjunk ugyanazon minta morfológiájáról, kémiai és radiokémiai összetételéről. Néhány esetben teljes szűrő mintákat valamint oldatokat is elemeztünk. A normálüzemi minták mérésével a fűtőelemek állapotáról, meghibásodásáról kaphattunk információkat.

A szűrőkön általában 1 l primervizet szűrtek át Pakson, s mi ezeket a szűrőket elemeztük. A szűréshez 0,1 ill. 0,4 μm pórusméretű Millipore membránt használtak. Többnyire leállási mintákat vizsgáltam, mivel a leálláskor bekövetkező tranzienseket (hőmérséklet-, nyomás-, bórsavkoncentráció-változás) követően nagyobb számban kerülnek ki részecskék a zónában jelenlevő makrohibás fűtőelemekből ill. a felületekről a hűtőközegbe. A minták nagy része a 3-as blokkból származott, mivel a paksi reaktorok üzemeltetése során ezen a blokkon volt a legtöbb fűtőelem meghibásodás. A BME NTI jódkoncentráció mérésen alapuló szakértői rendszere ill. az AEKI jódkoncentráció modellje alapján a konzervatívabb becslések szerint a fűtőelem-meghibásodási gyakoriság az 1-es blokkra 0,002% (18 kampányra), a 2-es blokkra 0,004% (18 kampányra), a 4-es blokkra 0,005% (14 kampányra), míg a 3-as blokkra 0,008% (16 kampányra). A vizsgált időszakban az NTI és a KFKI AEKI fűtőelemállapot értékelései szerint a 3. blokkban volt hibás fűtőelem.

Az alábbi 8.1.-es táblázatok a normálüzemben (többnyire leálláskor ill. leterheléskor azaz teljesítménycsökkentéskor) vett részecskék adatait tartalmazzák, valamint a vizsgálatukhoz alkalmazott módszereket. A táblázatban található rövidítések az alábbiak: AR: autoradiográfia, SEM: elektronmikroszkóp, α -sp.(F): alfa-spektrometria (feldolgozással), α : összalfa mérés. (Az autoradiográfiai vizsgálatokat a BME fotolaborjában végeztem el, valamint az alfa-mérésekre is a BME NTI-nél került sor. Az összalfa mérés során a szűrőminták alfaaktivitását az alfaspektrométeren radiokémiai elválasztás nélkül ellenőriztem, míg a az alfa-spektrometriás méréseknél a mintákból radiokémiai elválasztási eljárással elválasztottam a mérni kívánt elemeket (általában Pu, Am, Cm és U izotópokat), s utána határoztam meg a keresett izotópok aktivitását. Az elektronmikroszkópos méréseket a KFKI AEKI-ben található SEM-EDX berendezéssel végezte el Pintérné Dr. Csordás Anna.)

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
3/5A	paksi 3. blokki (leálláskor vett) primervizből szűrt egyedi, autoradiográfiával elkülönített részecske (az A jelű minták esetén a szűrő pórusmérete 0,4 μm volt, míg a B jelűeknél a pórusméret 0,1 μm volt)	2001. 07. 21-24. (leállás)	AR, SEM, α -sp.(F)
3/5B			AR, SEM, α -sp.(F)
3/6B			AR, SEM, α -sp.(F), μ -XRF
3/9A			AR, SEM, α -sp.(F)
3/12A			AR, SEM, α -sp.(F), μ -XRF
3/14A			AR, SEM, α -sp.(F)
3/15A1			AR, α -sp.(F)
3/15A2			AR, α -sp.(F)
3/15AF			AR, α -sp.(F)
3/17A			AR, SEM, α -sp.(F), μ -XRF

8.1.a. táblázat Normálüzemi primerkörü részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
HP4A	paksi 3. blokki (leterheléskor vett) primervizből szűrt egyedi, autoradiográfiával elkülönített részecske (szűrő pórusmérete 0,4 μm volt)	2001. 12. 25-26. (teljesítménycsökkentés)	AR, α -sp.(F)
HP4B			AR, α -sp.(F)
HP5			AR, α -sp.(F)

8.1.b. táblázat Normálüzemi primerkörü részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
3/1	paksi 3. blokki (leálláskor vett) primervízből szűrt egyedi, autoradiográfiával elkülönített részecske (szűrő pórusmérete 0,4 µm volt)	2002. 08. 18. (leállás)	AR, SEM, α-sp.
3/3			AR, SEM, α-sp.
3/4			AR, SEM, α-sp. (F)
3/5			AR, SEM, α-sp.(F)

8.1.c. táblázat Normálüzemi primerkörü részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

A alábbi táblázat a normálüzemben (leterheléskor) vett primervíz minták adatait tartalmazza, valamint a vizsgálatukhoz alkalmazott módszereket.

Oldatok jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
PV I.	3. blokki paksi primervíz 900ml-es szűrlete (0,4 µm-nél kisebb membránon volt átszűrve)	2001. 12. 25. (teljesítménycsökkentés)	α-sp.(F)
PV II.			α-sp.(F)
PV III.			α-sp.(F)
PV IV.			α-sp.(F)

8.2. táblázat Normálüzemi primervíz minták adatai és vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

8.2. Normálüzemi minták autoradiográfiás vizsgálata, az autoradiográfia megvalósítása a forró részecskék vizsgálatához

A bemutatott autoradiográfiás módszerrel különítem el a normálüzemi primerkörü szűrőmintákon található forró részecskéket. A részecskék ilyen módon való elkülönítése lehetővé tette, hogy egyedi részecskék, részecskecsoportok elemi- ill. izotóppösszetételét, méretét, szerkezetét vizsgáljuk.

A normálüzemi szűrőminták, (üzemzavari szűrő, valamint az üzemzavari dörzsminták) esetében a mintákat (akárcsak a kalibrációnál, 7.2. fejezet) elsőként lakkal fújtam le, hogy a részecskék helyét rögzítsem. A mintákhoz általában közvetlenül hozzászorítottam a film emulzióval borított felét és a minta össz-alfa aktivitásától, típusától függően pár percig, óráig vagy napig exponáltam. Az autoradiográfiás felvételeket a kalibrációs mérőszorozat eredményeinek ismeretében Fortepan 100-as filmmel készítettem el és az ott ismertett módon hívtam elő ill. fixáltam. A képek kiértékeléséhez ugyanúgy, mint a kalibrációs mintáknál a Photostyler képfeldolgozó programot használtam fel a felvételek beszkennelése után, ami a reprodukálhatóság és az összehasonlíthatóság érdekében mindig ugyanazzal a szkennelvel történt azonos beállítások mellett. A felhasznált szkennel HP ScanJet 5300C volt, a szkenneléshez a HP Precision Scan programot használtuk (300dpi-s fekete-fehér fotó beállítással). A mintákon található részecskék feketedését mindig a háttérrel korrigálva határoztam meg. (Néhány minta esetében Konica röntgenfilmmel is készítettem képeket.)

A részecskék méretének, mennyiségének, eloszlásának vizsgálatához MATLAB programot készítettem. A program lehetővé tette a részecskék számlálását, méret szerinti szétválogatását.

A kidolgozott film autoradiográfiás technika lehetővé tette a normálüzemi szűrőmintákon levő, nagyobb aktivitású területek, forró részecskék azonosítását, a minták aktivitás-eloszlásának vizsgálatát. Az alábbi táblázatok azon normálüzemi forró részecskék (8.1. és 8.2. táblázatok) nagyobb aktivitású szűrőterületek relatív feketedését (és szórását) adják meg, melyeket a későbbiekben radioanalitikai ill. mikroanalitikai módszerekkel vizsgáltunk meg.

8.2.1. A normálüzemi szűrők felvételeinek jellemzői, részecskék relatív (nettó) feketedés eredményeinek vizsgálata

A 8.3. táblázatok a későbbiekben mikro- ill. radioanalitikai vizsgálatokkal elemzett részecskék relatív (nettó) feketedés értékeit valamint a relatív (nettó) feketedés/exponálási idő hányadosokat tartalmazza. A relatív feketedés/exponálási idő hányadosok szórását alapvetően a feketedések szórása határozza meg, ezeket nem tüntettem fel külön a táblázatban, a normálüzemi részecskék esetében a relatív feketedés/exponálási idő hányadosok szórása 2-11% közé esett.

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
3/5A	158	5	24 óra	6,58
3/5B (felvételen látható jobb szélső részecske)	156	9		6,5
3/6B	112	10		4,67
3/9A (bal szélső részecske)	102	11		4,25
3/12A	154	5		6,42
3/14A	129	10		5,38
3/15A1 (alsó bal részecske)	160	7		6,67
3/15A2 (alsó jobb részecske)	162	6		6,75
3/15AF(felső részecske)	162	6		6,75
3/17A (középső részecske)	155	6		6,46

8.3.a. táblázat Normálüzemi primerkörü részecskék relatív feketedései

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
HP4A (baloldali részecske)	165	2	24 óra	6,88
HP4B (jobboldali részecske)	174	8		7,25
HP5	183	4		7,63

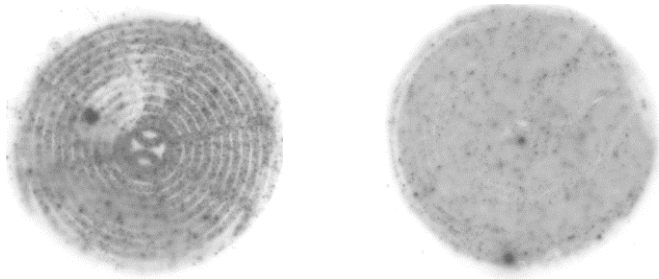
8.3.b. táblázat Normálüzemi primerkörü részecskék relatív feketedései

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
3/1	121	2	24 óra	5,04
3/3	114	3		4,75
3/4	144	7		6
3/5	105	6		4,38

8.3.c. táblázat Normálüzemi primerkörü részecskék relatív feketedései

Az alábbiakban néhány normálüzemi szűrőmintáról készített autoradiográfias felvétel látható. A felvételeken látható forró részecskék relatív feketedéseit tartalmazta a korábbi táblázat. A részecskék alfa-spektrometriás elemzéseinek eredményei a 8.4. fejezetekben lesznek részletezve. Néhány felvétel esetében a képek „szürkeségét” (fedettségét) átállítottam (de ez csak a felvételek kiértékelése után történt), hogy azok nyomtatott formában is megfelelő minőségűek legyenek.

A 2001. 07. 21-24-i mintavétel folyamán vett mintákról készített felvételek közül néhány a 8.1-8.3. ábrákon látható.

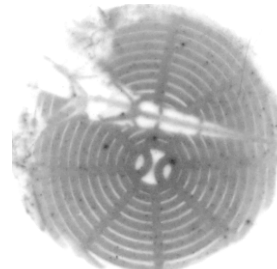
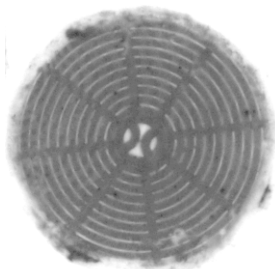
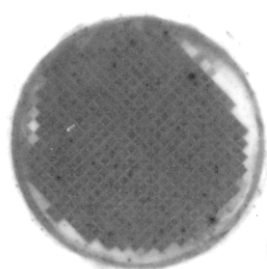


8.1.a-b. ábra 2001. 07. 21-24-i 3/5A (baloldali) és 3/5B (jobboldali) jelű szűrők Fortepan filmmel készített felvételei, az exponálási idő 24 óra volt

3/15A

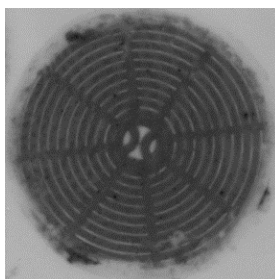
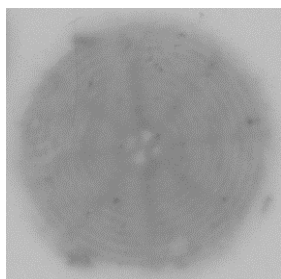
3/16A

3/17A



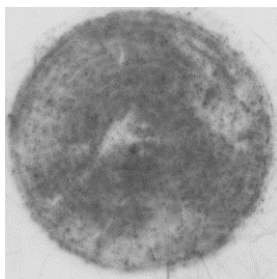
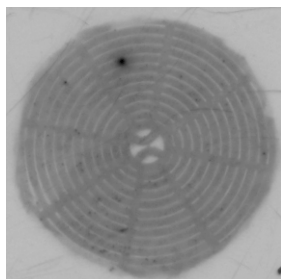
8.2.a-b-c. ábra 2001. 07. 21-24-i 3/15A (baloldali), 3/16A (középső) és 3/17A (jobboldali) jelű szűrők Fortepan filmmel készített felvételei, az exponálási idő 24 óra volt

Összehasonlításképpen a 3/16A szűrőről a Konica röntgen- és ugyanerről a Fortepan filmmel készített felvétel látható a 8.3. ábrákon. Az exponálási idők azonosak voltak.



8.3.a-b. ábra 2001. 07. 21-24-i 3/16A jelű szűrők Konica röntgenfilmmel (baloldali) ill. Fortepan filmmel (jobboldali) készített felvételei, az exponálási idő 24 óra volt

Két későbbi mintavételből származó szűrők felvételeit mutatja a 8.4.a-b ábra.



8.4.a-b. ábra 2001. 12. 25-26-i HP5 jelű szűrőről (baloldali) készült felvétel és 2002. 08. 18-i 3/4 jelű szűrőről (jobboldali) készült felvétel Fortepan filmmel, 24 órás exponálási idővel

Az autoradiográfiás felvételeket megtekintve, valamint a relatív feketedés értékeket meghatározva megállapítható, hogy a Fortepan 100-as fekete-fehér filmmel készített képek alapján a minták aktivitás eloszlása, inhomogenitása jól vizsgálható, ahogy azt a kalibrációs vizsgálatok is mutatták. A szűrőkön található mikroméretű részecskék térbeli eloszlása, helye feltérképezhető az autoradiográfiás képek alapján, a részecskék azonosítása után a részecskék elkülönítése is kivitelezhető. A képek többségén a szűrők mintázata is kirajzolódik, ami megkönnyíti a részecskék helyének pontos beazonosítását.

(Néhány minta esetében kipróbáltuk a korábban tesztelt Konica röntgenfilmet is, azonban az eredmények ugyanúgy, mint a kalibrációs mérések során jobbnak (nagyobb érzékenység, jobb felbontás) bizonyultak a Fortepan 100-as filmmel, ezért a Konica filmmel kapott eredményeket nem részletezem (lásd példaként a 8.3.a-b ábrán).

A felvételek jól reprodukálhatóak voltak (bizonyítják ezt a 7.3-as fejezetben bemutatott eredmények is), nagy előnyük volt a roncsolásmentes vizsgálat, gyorsaság, valamint az egyszerű kivitelezhetőség mellett a gazdaságos megvalósítás is. A reprodukálhatóság, a részecskék elkülönítése szempontjából nemcsak a felvételkedés, a feketedés értékek reprodukálhatósága volt fontos, hanem a részecskék helyének reprodukálhatósága is nélkülözhetetlen volt. Többszöri, egymás utáni felvételkedéssel, valamint alfa-mérésekkel győződhettem meg arról, hogy részecskéket a lakkal sikeresen fixáljuk a szűrőmintákhoz, így a felvételek alapján azok jól azonosíthatóak, elkülöníthetőek. A paksi primerkörü szűrők esetében az 1 napos exponálási idővel jól értékelhető felvételeket kaptam.

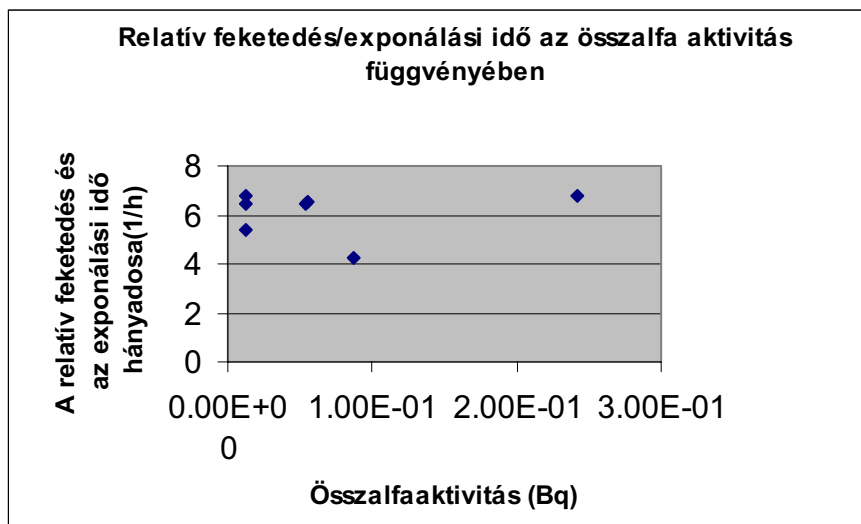
Az autoradiográfiás felvételek alapján a szűrőmintákból néhány mm²-es nagyságú területeket tudunk elkülöníteni. A részecskéket tartalmazó területeket kivágtuk a mintákból, majd elektronmikroszkóppal ill. alfaspektrometriával vizsgáltuk meg őket. A roncsolásmentes elektronmikroszkópos vizsgálatokat abban az esetben követte radiokémiai feldolgozás és Pu, Am/Cm valamint U mérés, ahol ezt a minták teljes alfaaktivitása indokolta. Az autoradiográfia alapján elkülöníthető területek nagyságuk szempontjából megfelelőek voltak mind az elektronmikroszkópos, mind a radioanalitikai vizsgálatokhoz. A szinkrotronnyalábos módszerekhez ennél pontosabb részecske elkülönítés lenne kívánatos, tekintettel a szinkrotronnyalábos mérések lényegesen magasabb fajlagos költségeire.

Kiszámítva az egyes részecskékre a relatív feketedés és az exponálási idő hányadosát a feketedés értékek eltérő exponálási idő alkalmazása esetén is összehasonlíthatók.

A relatív feketedés/exponálási idő értékeket megtekintve a 8.3. táblázatban látható, hogy az egyes részecskékre nagyságrendi eltérést nem mutatnak. A részecskékre meghatározott relatív feketedés/exponálási idő hányadosok 4,25-7,63 közé estek. Az átlagos relatív feketedés/exponálási idő 6,00 volt.

A részecskék (későbbiekben meghatározott) össz-alfaaktivitásait összehasonlítva a relatív feketedés/exponálási idő adatokkal megállapítható, hogy a részecskéknél nem mutatható ki egyenes arányosság a részecskék alfaaktivitása és a feketedés értékek között, szemben a 7.3.5. fejezetben bemutatottakkal. Ennek oka az lehet, hogy a részecskék a különböző energiájú alfa-, béta és gammasugárzó izotópokat keverve tartalmazzák, eltérő mennyiségben, a részecskék fixálásához használt lakk réteg vastagsága is mintánként eltérő lehet, valamint a részecskék önabszorpciója is jelentős lehet. (A 7.3.5. fejezetbe eredményei azonban lehetővé tették, hogy a minimálisan szükséges exponálási időt megbecsülhessem a felvételkedésekhez.) A Fortepan film feketedését főként az alfasugárzás, de kis mértékben a béta-sugárzás is okozza (7.3 fejezet). A béta-sugárzás esetén a feketedés már a béta-sugárzás energiájától is függhet, ami a béta-sugárzásnak az alfáénál nagyobb hatótávolságával magyarázható. A minták vegyesen tartalmaznak korróziós eredetű főleg béta-sugárzó szemcséket és fűtőelem eredetű alfa-, béta és gammasugárzó szemcséket.

A következő ábrán a relatív (nettó) feketedés/exponálási idő hányadosát ábrázoltuk az össz-alfaaktivitás függvényében 2001. 07. 21-24. között vett forró részecskék esetében példaként. (A részecskék relatív feketedés/exponálási idő adatait a 8.3 táblázatok tartalmazzák) Az ábra is mutatja, hogy a kevert sugárzást tartalmazó részecskéknél az össz-alfaaktivitás és a feketedés között nincs lineáris kapcsolat. Összefüggésben lehet a kapott eredmény azzal is, hogy az aktivitás értéke nemcsak a feketedéssel lehet kapcsolatban a részecskék esetében, hanem a felvételeken látható sötét foltok méretével is. Ennek a kapcsolatnak a további részletesebb vizsgálata nem volt célunk. A filmek feketedésének „pontatlanságát” okozhatja a film telítődése is, de mivel a részecskék elkülönítéséhez nem volt szükség a feketedés pontos meghatározásához, így filmek ilyen kalibrációjával nem foglalkoztunk a felvételkedések előtt.



8.5. ábra Relatív feketedés/ exponálási idő az összalfa aktivitás függvényében a 2001. 07. 21-24. között vett forró részecskék mérési eredményei alapján

8.2.2. Részecskék mennyiségének, eloszlásának, a részecskék okozta feketedések méretének vizsgálata

Megtekintve a különböző mintavételek után készített felvételeket, látható, hogy a szűrőkön található részecskék eloszlása, mérete, mennyisége igen eltérő.

A szemcsék méretének, mennyiségének pontosabb becsléséhez egy rövid MATLAB programot készítettem. A kereskedelemben kapható képfeldolgozó programok általában alkalmasak a részecskék azonosítására, azonban nem számolhatók meg vele a részecskék, valamint méretük sem becsülhető meg (Corel Photopaint, Xnview). Léteznek összetettebb szoftverek, melyeket pl. mikroszkópos képek kiértékelésére használnak, melyek alkalmasak ezekre a feladatokra is, azonban ezek igen költségesek, mivel sokszor egy mérőberendezés részeként szerezhetők be.

Az elkészített MATLAB program a beolvasott autoradiográfias képet átkonvertálja fekete/fehér képpé úgy, hogy bizonyos feketedés-érték feletti és bizonyos méret feletti részeket hagy csak meg a képből. Ezzel az algoritmussal lehetővé válik a részecskék elkülönítése, és a bizonyos képpontnyi méret feletti szemcsék összeszámlálása és méret szerinti rendezése. A programmal fekete/fehérré konvertált képek is elmenthetők, ellenőrizhetők. A képek kiértékelése során a 4 képpontnál nagyobb méretű szemcséket (a szemcsék: a fekete-fehér képen az elkülöníthető feketedés foltok) számoltattam meg a programmal, a feketedés értéket pedig, ahol a program elvágja a képet a szűrők és a rajtuk levő részecskék relatív feketedésének ismeretében állítottam be képenként (35-100 közé a 0-255-ig terjedő feketedési skálán). Tapasztalatom szerint a 4 képpontnál kisebb méretű szemcsék általában már csak a film felületének hibáiból adódnak és nem köthetők ténylegesen forró részecskékhez. Az általam használt 300dpi felbontású szkennelrel digitalizált képek esetében egy képpont (pixel) a felvételeken egy 0,085 mm átmérőjű „pontnak” felel meg.

A 8.4. táblázatban, néhány normálüzemi szűrőre kapott eredmény látható. A szűrők mindegyikén 11-nyi víz volt átszűrve és 3-as blokki leálláskor ill. teljesítménycsökkentéskor vett mintákat tartalmaztak. (A szűrők autoradiográfias képeit az előzőekben bemutattam (8.1.-8.4.ábrák) ill. a mellékletben megtalálhatóak. A szűrők mindegyikéről különítettem el részecskét, ezek relatív feketedés értékei is megtalálhatóak a korábbi 8.3 táblázatokban.)

Teljes szűrő kódja (szűrő pórusmérete)	Mintavétel ideje	Exponálási idő (óra)	Összes részecske száma (db)	Szemcsék mérete (pixel)	Adott méretű részecskék száma (db)
3/5A (0,4µm)	2001. 07. 21.	Az exponálási idő mindegyik szűrő esetében 24h volt.	24	165	1
				23	1
				11	4
				10	2
				9	1
				8	2
				6	2
				5	3
				4	8
3/5B (0,1µm)	2001. 07. 21.		6	126	1
				43	1
				6	1
				4	3
3/6A (0,4µm)	2001. 07. 21.		7	9	2
				8	1
				6	1
				5	1
				4	2
3/6B (0,1µm)	2001. 07. 21.		13	31	1
				29	1
				13	1
				12	1
				9	1
				7	1
				5	5
				4	2
3/15A (0,4µm)	2001. 07. 23.		5	31	1
				11	1
				6	1
				5	1
				4	1
3/16A (0,4µm)	2001. 07. 23.		4	10	1
				7	1
				6	1
3/17A (0,4µm)	2001. 07. 24.		3	61	1
				25	1
				18	1
HP4 (0,4µm)	2001. 12. 25.		A programmal a homogén szennyeződés miatt, a részecskék nem ill. nem megbízhatóan különíthetők el.		
HP5 (0,4µm)	2001. 12. 26.		2	54	1
				6	1
3/1 (0,4µm)	2002. 08. 18.		A programmal a homogén szennyeződés		
3/3 (0,4µm)					
3/4 (0,4µm)					

3/5 (0,4µm)			miatt, a részecskék nem ill. nem megbízhatóan különíthetők el.		
-------------	--	--	--	--	--

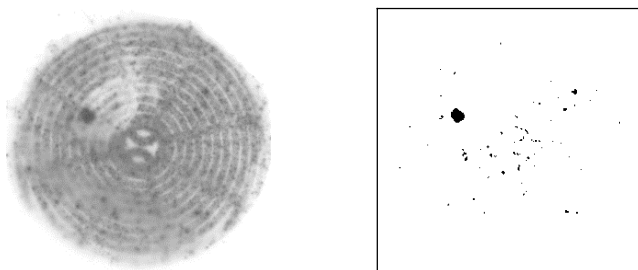
8.4. táblázat Normálüzemi szűrők „szemcsestatistikája”

A 8.4. táblázat alapján látható, hogy a részecskék száma, szemcsék mérete a 2001-es leállási minták esetében eltérő volt. A 2001-es mintavételek során nagy méretű, jól elkülöníthető részecskéket találtunk, igen nagy gyakorisággal. Ebben a kampányban a fűtőelemek állapotának értékelésekor a zónában makrohibás fűtőelem jelenlétét mutatták ki (lásd a későbbi 8.4.3 fejezetet). Erre utal a szűrőmintákon jelenlevő relatíve nagy mennyiségű, sokféle méretű szemcse is. A részecskék okozta feketedések méretének (ill. a fekete-fehér képen látható szemcsék méretének) vizsgálatok fontos megemlíteni, hogy a feketedések mérete nem feltétlen csak a részecskék méretével, hanem azok aktivitásával is kapcsolatban van.

A későbbi normálüzemi mintákon (a mellékletben található (M4. és M5. ábrák), részecskéket nem tartalmazó felvételeken) a szemcsék mérete az autoradiográfias felvételek alapján kisebb, mennyiségük kevesebb és nehezebben elkülöníthetők, a szűrőkön az aktivitás homogén eloszlású. A nagy méretű szemcsék mennyiségének csökkenését ill. az aktivitás homogén eloszlását igazolják a táblázat adatai is. A 2001. decemberi HP5-ös mintán csak két részecske volt elkülöníthető, míg a HP4 jelű szűrőn a programmal már nem lehetett a részecskéket megkülönböztetni, mivel a teljes szűrőmintá szinte egyenletesen sötétszürke színű, ami az aktivitás homogén eloszlására utal. A szennyezettség a képfeldolgozás szempontjából akkor tekinthető homogénnek, ha nagyon alacsony levágási küszöb mellett sem lehet min. 4 képpont nagyságú részecskéket elkülöníteni. A 2002-es 3/1, 3/3, 3/4, 3/5-ös szűrőmintákon is a közel homogén szennyeződés miatt a programmal nem lehet elkülöníteni a részecskéket. (A HP4-es ill. 3/1, 3/3, 3/4, 3/5-ös szűrők eredeti autoradiográfias felvételei alapján még nehezen, de azonosítható néhány forró részecske vizuálisan, dacára a sötét szűrőnek. Ezeket a részecskéket el is különítettük a későbbi vizsgálatokhoz.) A 2001. decemberi és 2002-es szűrőmintákon található homogénebb szennyeződés szintén magyarázható a fűtőelem vizsgálatok további eredményeivel. A 2001. júliusi leállást követően, a további kampányokban nem találtak újabb fűtőelem-meghibásodást, így a későbbiekben detektált részecskék, akár korábban kikerült, esetenként már részben feloldódott részecskék is lehetnek. A 2003-as normálüzemi leállási minták esetében a szűrőminták autoradiográfias képén nem voltak jól elkülöníthető fekete pontok, a szűrők nem tartalmaztak forró részecskéket. (Ezt bemutatandó, 2003-as minták autoradiográfias felvételei a mellékletben megtalálhatók az M7. ábrán.)

A táblázatban szereplő szűrők esetén az exponálási idők azonosak voltak és úgy lettek megválasztva, hogy a képek jól értékelhetőek legyenek, így a részecskeszámok/méretük összehasonlíthatók.

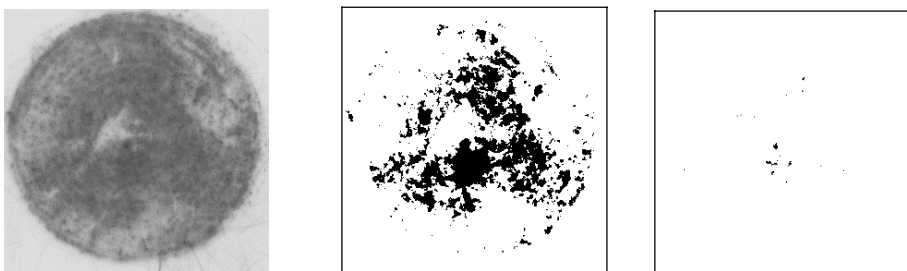
Az 8.6. ábrán a 3/5A szűrő autoradiográfias felvétele és a MATLAB programmal kapott levágott fekete-fehér, csak szemcséket mutató képe látható.



8.6.a-b. ábra 3/5A szűrő autoradiográfias felvétele (baloldali) és a MATLAB programmal kapott levágott fekete-fehér kép (jobb oldali)

A 8.7.a-b-c ábrán a 3/4 jelű szűrő autoradiográfias és MATLAB-os fekete-fehér képei láthatók. A közel homogén (foltokban homogén) szennyeződés mellett a kép levágásával csak nehezen lehet különáll szemcséket elkülöníteni. A második és a harmadik kép esetében más feketedés értéket állítottam be levágási küszöbként. A homogén szennyeződés miatt a képnek csak a nagyon fekete részei tarthatók meg ahhoz, hogy a részecskék elkülöníthetőek legyenek (ahogy azt a harmadik ábra mutatja). A harmadik kép alapján a részecskék már megkülönböztethetők (a legnagyobb lett elkülönítve a mikro- és radioanalitikai vizsgálatokhoz), azonban a nagyon alacsony levágási feketedés küszöb megválasztása miatt a szemcsék méretének becslése nem pontos.

(Ezért nem tartalmazza a táblázat ennek a szűrőnek a részecskestatistikáját, hasonlóan a 3/1, 3/3, 3/5 és HP4 jelű szűrőkhöz.)



8.7.a-b-c. ábra 3/4 jelű szűrő autoradiográfiás felvétele (baloldali) és a MATLAB programmal kapott levágott fekete-fehér képek (középső és jobboldali)

A felvételek vizuális vizsgálata ill. a MATLAB programmal történő szemcse elkülönítés alapján az is megállapítható, hogy a részecskék azonosításában, elkülöníthetőségében nemcsak a háttérhez képest mérhető relatív feketedésnek van szerepe, hanem fontos a minták inhomogenitása, a szűrőminták és a részecskék egymáshoz viszonyított feketedése is. A vizsgálatok azt mutatták, hogy azokban az esetekben, ahol a szűrő homogén szennyezettségéből adódó feketedés és a részecske feketedése közti különbség abszolút értékben meghaladta az 50-et, a programmal a részecskék jól elkülöníthetőek, a szemcsék mérete a felvételeken megbecsülhető. Ha a részecskék feketedésének és a szűrő homogén feketedésének különbsége abszolút értékben ennél kisebb (pl.: a 3/1, 3/3, 3/4, 3/5 és HP4 felvételeken 10-40 közötti), akkor a részecskék csak nehezen elkülöníthetőek és az alacsony levágási küszöb miatt nem lehetséges a méretük pontos becslése. Az ilyen képeken található részecskék kiértékelése egy, a mostaninál lényegesen bonyolultabb program (pl. adaptív küszöbölést és szelektív régiókeresést felhasználó algoritmusok) segítségével lenne lehetséges (Jähne, 1999), de egy ilyen program elkészítése túlmutat a jelenlegi vizsgálataink célkitűzésein.

8.3. Normál üzemi minták elektronmikroszkópos vizsgálata

A kidolgozott autoradiográfiás módszerrel az autoradiogramok alapján részecskéket, részecskehalmozokat különítettem el, melyeket nemcsak roncsolásos radioanalitikai módszerekkel lehetett elemezni, hanem néhány normálüzemi primerkörü szűrőminta esetében a KFKI-vel való együttműködés nyomán a minták elektronmikroszkópos elemzésére is sor kerülhetett. Az elektronmikroszkópos elemzéseket Pintérné Dr. Csordás Tóth Anna végezte el. A pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatokkal a részecskék mérete, elhelyezkedése, szerkezete vizsgálható roncsolásmentesen, a mikrométeres mérettartományban, és a részecskék elemi összetétele is meghatározható. Az elektronmikroszkópos vizsgálatokkal alapvető célunk az U kimutatása lett volna, többnyire azonban csak a korróziós termékek detektálása volt sikeres. (Az elektronmikroszkópos mérés technika elméleti háttére a 2.5.1 fejezetben olvasható.)

8.3.1. Az alkalmazott elektronmikroszkópos technika lényege

Az elektronmikroszkópos vizsgálatok során Millipore membránról, autoradiográfiás felvételek alapján elkülönített részecskék/részecskehalmozok morfológiáját, összetételét vizsgáltuk elektronsugaras analízissel. A szűrőmembránokból kivágott néhány mm-es nagyságú részeket kétoldalú szénragasztóra helyezve készítettük elő az elektronmikroszkóp mintatartójához. A minták vizsgálata előtt csak néhány esetben párologtattak szén aranyat a minták felületére.

A minták felületközeleli nagyon vékony, max. 5-10 nm-es rétegeből kilépő kisenergiájú másodlagos (szekunder) elektronokkal a részecskék morfológiáját, a szemcsék méretét, alakját tanulmányoztuk. A felület közeléből származó elektronok mennyisége és eloszlása alapján készített SEI (secunder electron image)-szekunder elektron) képeken a minta domborzatát tanulmányoztuk. Esetünkben a BEI (backscattered electron image) üzemmód használatával a nagy átlagrendszámú, U dús szemcsék megkeresése lett volna a fő cél (Pintér-Csordás, 2000), (Csordás Tóth, 1991), (Vajda, 2001).

A minták érdekesebb részein energiadisziperzív mikroanalízist (EDS-t) végeztek. Általában 100 másodperc nagyságrendű időtartam alatt vették fel egy adott mintarészlet felület közeli (max. néhány mikrométer mélységű) rétegében lévő elemeket. EDS spektrumok készíthetők, amelyek a röntgen fotonok energiájának függvényében mutatják be a mintában legalább tized tömeg %-ban jelenlévő elemek karakterisztikus röntgensúcsait.

A karakterisztikus röntgenfotonokon kívül folytonos röntgen-sugárzás is megmutatkozik az EDS spektrumokon, amely mint háttér matematikai eljárással, számítógéppel le lett vonva. Az így nyert röntgensúcsok területét mérve, és egy adott elem röntgensúcsára vonatkoztatva a vizsgálandó anyag félkvantitatív összetételét határozták meg (Pintér-Csordás, 2000), (Csordás Tóth, 1991), (Vajda, 2001).

A normál, ún. Be-ablakos félvezető detektoros analizátorral a Na alatti elemek, így az oxigén, a szén, a bór, stb. nem mutathatók ki. Ez azt jelenti, hogy pl. oxidminta esetén csak a fémes összetevőkre kapunk információt. Néhány esetben lehetőség volt olyan vékony Be-ablakos mérőrendszerrel is megvizsgálni néhány mintát, mellyel a kisrendszámú elemek is mérhetőek voltak. Ezzel a rendszerrel az oxigént is ki lehetett mérni (Pintér-Csordás, 2000), (Csordás Tóth, 1991), (Vajda, 2001).

8.3.2. Az elektronmikroszkópos elemzésekhez használt berendezések jellemzői

A vizsgálatokat többnyire egy Philips SEM 505 típusú pásztázó elektronmikroszkóppal végezték el 20 kV gyorsítófeszültség és néhány 10 nA mintaáram alkalmazásával. A mikroszkóp felbontóképessége 7 nm. Az energiadisziperzív analizátor típusa LINK AN 10/55S volt, amely a Na-tól az U-ig terjedő elemtartományban alkalmas szilárd anyagok kvalitatív, félkvantitatív és bizonyos feltételek teljesülése esetén kvantitatív elemösszetétel vizsgálatára kb. 0,1 t% kimutathatósági határral. (Ez azt jelenti, hogy a detektálhatóság feltétele az adott vizsgálati területen - amely minimálisan kb. $1 \mu\text{m}^2$ - hogy az adott elem koncentrációja legalább 0,1 t% legyen.)

Néhány minta esetében lehetőség volt egy JEOL Superprobe 733 típusú mikroanalizátorhoz csatlakozó Oxford gyártmányú, ún. vékony Be-ablakos EDX (energiadisziperzív) rendszerrel is vizsgálatokat végezni. Az Oxford gyártmányú vékonyablakos EDX rendszer kvantitatív elemanalízis vizsgálatok végzésére is alkalmas.

8.3.3. Az elektronmikroszkópos vizsgálatok eredményei normál üzemi részecskék esetében

Az alábbiakban normál üzemi minták elektronmikroszkópos méréseinek eredményeit foglaljuk össze.* A vizsgálatok során 3-as blokki, primerkörü, leállási minták elemzésére került sor. A normálüzemi minták vizsgálatával elsődleges célunk az U jelenlétének kimutatása lett volna, azonban a minták túlnyomórészt nagyobb mennyiségben korróziós termékeket tartalmaztak. Néhány minta esetében olyan hasadási termékek jelenléte volt kimutatható, mely egyértelműen a fűtőelemek sérülése következtében kerülhetett ki a primervízbe.

Elsőként a 2001-es leállásból származó primerkörü minták (3/5A, 3/5B, 3/6B, 3/9A,3/12A, 3/14A, 3/17A) elektronmikroszkópos vizsgálatára került sor. A minták legnagyobb mennyiségben korróziós termékeket tartalmaztak. A szemcsék fő alkotói Fe-Ni-Cr ill. Fe-Cr-Ni-Si (néhol Mn vagy Mo) volt. A Fe-ban gazdagabb első típusú szemcséből több volt, mint a második fajtából. Néhány szemcse esetében azonban a Cr volt a részecske fő alkotója. Néhány mintában (3/14A) kisméretű Zr dús, néhányban pedig nagyobb méretű Zr dús szemcse volt. Kevés U jelenléte a Zr dús szemcsék esetében merült fel. Az U mennyisége 0,2-0,45 t% közötti lehet. Kis mennyiségű U jelenlétét a 3/5A, 3/5B ill. 3/6A mintában lehetett kimutatni, azonban kis mennyisége miatt csak igen nagy bizonytalansággal.

Hasonlóan fűtőelem-meghibásodásra utalóak voltak a La-Ce-Nd ill. a Ba-Ce tartalmú szemcsék. Néhány egyedi, különleges összetételű szemcsében Pb-ot, esetenként Ag-öt ill. Sn-t lehetett a részecskékben kimutatni. Voltak szemcsék, melyekben Cu-t találtunk.

Az autoradiográfia alapján elkülönített szemcsék bontottságát, méretét is vizsgálhattuk a SEM felvételek alapján. Míg az autoradiográfia alapján néhány négyzetmilliméteres tartomány különíthető el a mintából, melyen nagy valószínűséggel egy aktívabb részecske található, addig az elektronmikroszkópos felvételek alapján az ezeket a részecskéket alkotó néhány mikrométer nagyságú szemcsék összetétele, mérete morfológiája tanulmányozható. Az autoradiográfias felvételek alapján elkülönített forró részecskék szemcséi főként 1-2 μ m-esek voltak, néhány esetben azonban nagyobb 5-10-20 μ m-esekkel is találkozhattunk.

Érdekes volt, hogy a szemcsékben az U kimutatása nagyon bizonytalan volt, míg Ce-ot és La-t egyértelműen lehetett mérni. Ennek okai egyrészt az eltérő gerjesztési körülmények (az U L-vonalai, míg a Ce/La K-vonalai gerjeszthetők és ezért az U-ra magasabb a kimutatási határ), másrészt az elemek eltérő oldódása lehet. A későbbi üzemzavari minták gamma-spektrometriás vizsgálati rámutattak arra, hogy a Ce nagy része szemcsékhez kötött formákban fordul elő leginkább (9.4.2 fejezet).

A 2002. augusztusi leállási 3-as blokki, primerkörü szűrődarab minták (3/1, 3/3, 3/4, 3/5) vizsgálata során túlnyomórészt korróziós termékeket lehetett kimutatni hasonlóan a 2001-es mintákhoz. A részecskék mérete az 1-3 μ m-es, valamint a 6-8 μ m tartományba esett általában, gömbszerűek, szögletesek ill. szabálytalan alakúak voltak. Néhány nagyobb szemcsehalmaz mérete 20-30 μ m lehetett. A szemcsék legnagyobb része Fe-at ill Cr-ot tartalmazott nagyobb mennyiségben. Szennyezőként Mn, Cl, Si, Ca volt jelen. (Ezekből a Cl valószínűleg a minták előkészítése során kerülhetett a szemcsékre, szennyezőként.) Előfordult, hasonlóan a korábbi mérésekhez Ce- és Pb-dús szemcse is.

Az elemzések során a 3/4-es mintában lehetett kimutatni egy nagyobb méretű U-dús szemcsét. A szemcse hosszúkás alakú, kb. 3-4 μ m hosszú és 1 μ m széles volt. Az U-on kívül csak nagyon kevés Cs-ot lehetett detektálni a mintában. A mintában a későbbi alfa-spektrometriás méréssel is kimutattuk az U-t (8.4.3 fejezet 8.8.c táblázata tartalmazza a részecske alfaaktivitásait.).

Összefoglalva, az elektronmikroszkópos vizsgálatok megmutatták, hogy az autoradiográfias felvételek alapján elkülönített néhány mm²-es szűrődarabokon néhány μ m-es nagyságú részecskék találhatóak, melyek esetenként néhány 10 μ m-es aggregátumokba rendeződnek. A vizsgált primerkörü részecskék, részecsehalmazok relatíve nagy mennyiségben tartalmaztak korróziós termékeket is az alfa-spektrometriával kimutatható alfasugárzó transzurán izotópok mellett.

8.3.4. Korróziós nuklidok eredete a normálüzemi minták esetében

Az elektronmikroszkópos mérések során néhány minta esetében az oxigéntartalmat is meghatározták a korróziós termékek mérése mellett, így az oxigéntartalom ismeretében lehetőségem nyílt arra, hogy vizsgálhassam a primerkörben keringő forró részecskéket alkotó szemcsék, szemcsehalmazok eredetét. A néhány mikrométer nagyságú szemcsékben mérhető korróziós termékek arányát összevetve az elméletileg lehetséges

* Az elektronmikroszkópos vizsgálatokat és a spektrumok kiértékelését Pintérmé Dr. Csordás Tóth Anna (KFKI AEKI) végezte.

fémoxidok és ötvözetek összetételével - melyek jelen vannak szerkezeti anyagként a primerkörben - következtettem a korróziós szemcsék eredetére.

Az atomerőművek primerkörébe a szerkezeti anyagok korróziója révén kerülhetnek korróziós termékek. A primerköri szerkezeti anyagok közül legnagyobb felületük révén a gőzfejlesztő csövek (kb. 60%) és a fűtőelem burkolatok (kb. 40%) szerkezeti anyagai határozzák meg a korróziós termékek összetételét. A primerköri csövek összes felülete elhanyagolható az előbbi két szerkezeti elem mellett. A fűtőelemek burkolata a könnyűvíz hűtésű reaktorokban cirkónium ötvözet, Zircaloy a nyugati típusoknál és Zr-Nb a szovjet tervezésű és építésű reaktoroknál. A cirkónium oxidok a felülethez jól tapadó védőbevonatot képeznek. Rozsdamentes acélok (SS) a fő szerkezeti anyagok minden reaktor típusban, a tartály bélésanyagának alkotói, gőzfejlesztő csövek alapanyaga (VVER reaktorokban), továbbá a fűtőelem burkolatok is tartalmaznak rozsdamentes acélt (pl. a fej és a láb rész VVER-ben). A korróziós szemcsék eredetének vizsgálata a primerkörben elméletileg előforduló fém-oxidok ill. ötvözetek összetételének ismeretében valósulhat meg. A 8.1. táblázat a primerkörben elméletileg előfordulható korróziós szemcsék lehetséges elméleti összetételét mutatja. (Vajda (2), 2004)

Korróziós szemcsék tömeg %-os összetétele elméleti megfontolások és irodalmi adatok alapján				
	Fe	Cr	Ni	O
elemi Fe	100			
acél: X18H10T	70	18	10	
FeO	78			22
magnetit: Fe ₃ O ₄	72			28
hematit: Fe ₂ O ₃	70			30
Cr-spinel: CrFe ₂ O ₄	49	23		28
Ni-ferrit: NiFe ₂ O ₄	48		25	27
külső oxid réteg: Fe _{2,4} Ni _{0,6} O ₄	57		15	27
belső oxid réteg: Cr ₂ Fe _{0,75} Ni _{0,25} O ₄	19	46	7	28
CrFe _{1,5} Ni _{0,5} O ₄	37	23	13	28

8.5. táblázat A primerkörben elméletileg előfordulható korróziós szemcsék lehetséges elméleti összetétele (Vajda (2), 2004)

Az alábbi két táblázat a 2002 augusztusi, leállási, 3-as blokki, primerköri 3/1 és 3/3-as jelű szűrődarabon talált forró részecskét alkotó mikrométeres méretű szemcsék kvantitatív elektronmikroszkópos eredményeit foglalja össze. (A 3/1 és 3/3-as jelű forró részecske adatait a 8.1. fejezet 8.1.c. táblázata tartalmazza. A táblázat utolsó oszlopa szemcsék eredetéről ad felvilágosítást, melyet a lehetséges elméleti összetételek figyelembe vételével adtam meg.

3/1 minta néhány szemcséjének kvantitatív EDX eredményei					
Szemcse száma	Elem (t %)				Lehetséges fő összetevő
	O	Cr	Fe	Ni	
1	20	0,49	71	8,3	Fe/Ni/Cr oxid
2	11	0	80	8,4	Fe/Ni oxid
3	10	0	72	6,4	Fe/Ni oxid
4	11	0	81	7,8	Fe/Ni oxid
5	10	1,6	76	12	Fe/Ni/Cr oxid
6	18	1,8	71	9,8	Fe/Ni/Cr oxid
7	17	2,0	63	14	Fe/Ni/Cr oxid
8	8	0	84	8,3	Fe/Ni oxid
9	14	0	77	8,1	Fe/Ni oxid
10	2,4	0	91	6,6	Fe/Ni oxid
11	8,1	0	83	9,2	Fe/Ni oxid
12	18	1,3	74	7,1	Fe/Ni/Cr oxid
13	16	1,6	75	7,3	Fe/Ni/Cr oxid
14	15	0,26	74	11	Fe/Ni/Cr oxid
15	11	0,4	80	7,5	Fe/Ni/Cr oxid

8.6 táblázat A 3/1 jelű forró részecskét alkotó mikrométeres méretű szemcséinek kvantitatív EDX eredményei és a szemcsék lehetséges fő összetevői

3/3 minta néhány szemcséjének kvantitatív EDX eredményei				
Szemcse száma	Elem (t %)			Lehetséges fő összetevő
	O	Cr	Fe	
1	11	12	71	Fe/Cr oxid
2	20	6,6	68	Fe/Cr oxid
3	23	4,3	68	Fe/Cr oxid
4	23	5,1	68	Fe/Cr oxid
5	34	11	49	Fe/Cr oxid
6	28	11	57	Fe/Cr oxid
7	31	6,1	59	Fe/Cr oxid
8	17	0	60	hematit/magnetit
9	43	2,9	42	Fe/Cr oxid
10	34	4,8	53	Fe/Cr oxid
11	24	0	70	hematit/magnetit
12	40	2,9	51	Fe/Cr oxid
13	27	6,9	4,9	Fe/Cr oxid
14	2,4	0	84	Elemi Fe/FeO
15	25	0,81	62	Fe/Cr oxid

8.7 táblázat A 3/3 jelű forró részecskét alkotó mikrométeres méretű szemcséinek kvantitatív EDX eredményei és a szemcsék lehetséges fő összetevői

A két forró részecske szemcséinek elemzéséből látható, hogy tiszta vas-oxidok csak ritkán fordultak elő a szemcsékben, főként vegyes oxidokat tartalmaztak a szemcsék. A Cr ill. Ni tartalmú szemcsékben azonban az összetevők aránya nem felelt meg az elméleti Cr-spinel, Ni-ferrit vagy egyéb Cr-Fe-Ni-oxid összetételnek. (8.5. táblázat). A táblázatok alapján az is megállapítható, hogy míg a 3/1-es forró részecskét tartalmazó szemcsék elképzelhető fő összetevői Fe/Ni ill. Fe/Ni/Cr oxidok, addig a 3/3-as forró részecskéket alkotó szemcsék összetétele sokkal változatosabb. A 3/1-es forró részecskét alkotó szemcsékben sokszor fordult elő Ni a Fe mellett fő komponensnek, ezzel szemben a 3/3-as részecskét alkotó szemcsékben a Fe mellett a Cr volt az egyik fő összetevő.

A részecskék tehát valamilyen oxidrétegből származnak, melyek többnyire a gőzfejlesztők ill. a fűtőelemek felületén rakódhatnak le. A részecskék eredetének pontosabb meghatározása az elektronmikroszkópos mérések gamma-, béta- és ICP-MS-mérésekkel való kiegészítésével valósulhatna meg. A hosszú élettartamú korróziós termékek specifikus aktivitásának meghatározásával lehetne következtetni a részecskék zónában való tartózkodási idejére ill. a részecskék pontosabb származási helyére, azonban ezek a vizsgálatok nem képezték doktori munkám tárgyát (Kerkápoly, 2005).

8.4. Normál üzemi minták radioanalitikai vizsgálata, alfa-spektrometriája

A hibás ill. károsodott fűtőelemek detektálása, vizsgálata szempontjából igen fontos szerepet tölt be a gamma-sugárzó Cs és I izotópok mérése mellett az alfasugárzó transzurán izotópok aktivitásának meghatározása is a vízmintákban ill a szűrőkben (4.5 fejezet). A hosszú felezési idejű transzurán izotópok, pl. plutónium, kúrium nuklidok elemzése különösen fontos az atomerőművi mintákból elkülönített forró részecskékben, mert csekély oldhatóságuk miatt többnyire a részecskékben koncentrálnak és mennyiségük kapcsolatban van a fűtőelemek kiégettségével. Ezek az izotópok alfa-spektrometriával igen nagy érzékenységgel (néhány mBq mintánként) detektálhatók. (Pl. 1 mBq ^{239}Pu megfelel $4 \cdot 10^{-13}$ g-nak.)

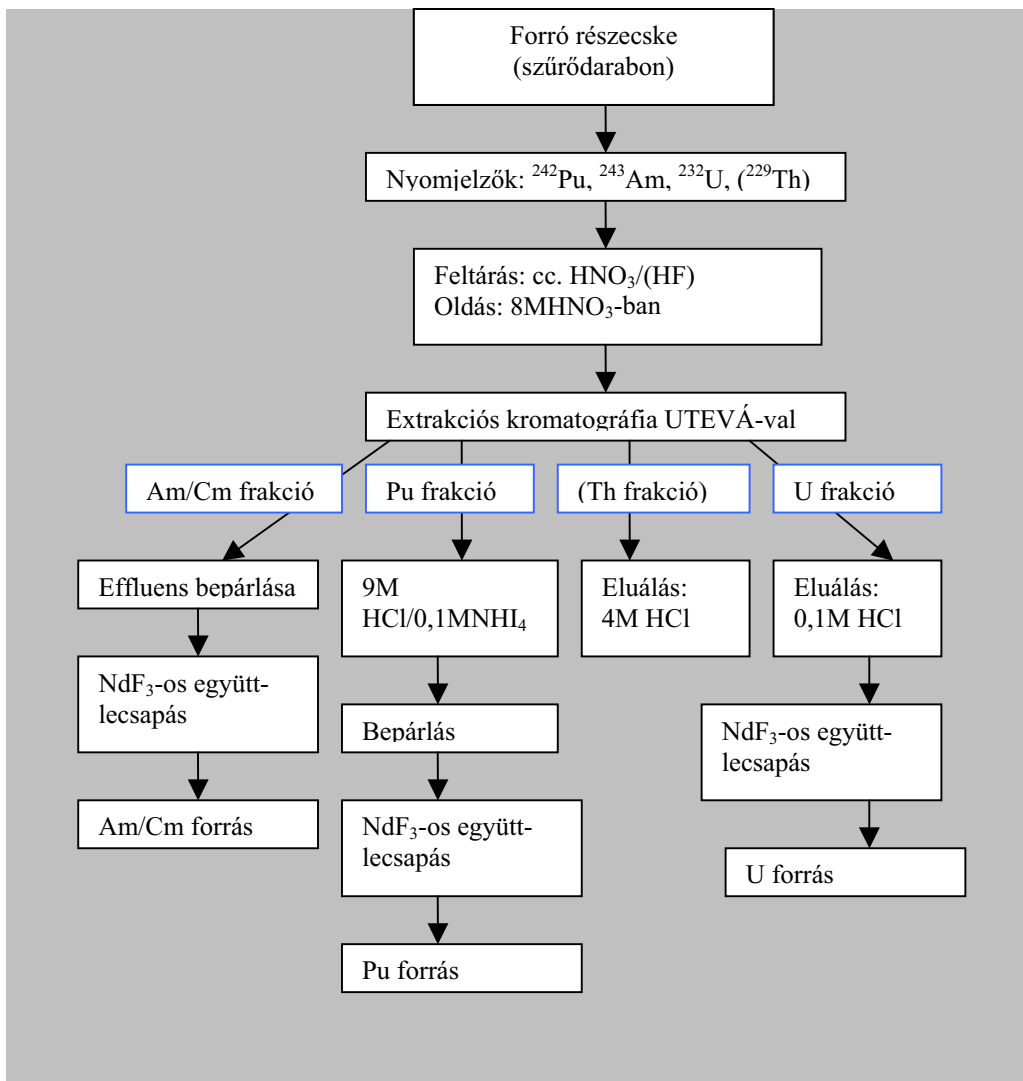
8.4.1. Radiokémiai elválasztási eljárás

A normál üzemi, valamint üzemzavari eredetű forró részecskék alfa-spektrometriás vizsgálata során az alfasugárzó Pu, Am/Cm ill. néhány esetben az U izotópok aktivitását határoztam meg. Az izotópok aktivitásának alfa-spektrometriás mérését szükségszerűen radiokémiai elválasztási eljárás előzte meg.

A normálüzemi, primerkörü vízmintákat általában a paksi atomerőmű 3-as blokkjának hűtőközegéből vették reaktorleálláskor ill. teljesítménycsökkentéskor. A vízből a részecskefrakciót szűréssel távolítottuk el (kb. 11-nyi vizet szűrtünk le), 0,1 ill. 0,4 μm -es pórusméretű Millipore membránt használva. Néhány minta esetében közvetlenül a vízminták elemzésére is sor került, ekkor a primervízből ill. az üzemzavar következtében szennyeződött vízmintákból kb. 1 l-nyi térfogatot dolgoztunk fel.

A radiokémiai elválasztások során háromféle eljárást használtam a transzurán izotópok elválasztására.

- 1.) Az első néhány normálüzemi minta elemzésénél a Pu ill. Am/Cm frakciót választottam csak el és az uránizotópok aktivitását nem mértük meg (2001 augusztusi, leállási minták). Ezekben az esetekben a mintákhoz nyomjelzőket (^{242}Pu , ^{243}Am) adtunk, majd mikrohullámú berendezésben tartam fel salétromsavval és folyssavval. A Pu-ot oxidálva szelektíven választottam el az Am/Cm frakciótól, majd NdF_3 -os mikro-együttleválasztásos technikával készítettem el a Pu ill. Am/Cm forrásokat. (A Pu oxidációs állapotát az eljárás során KMnO_4 -tal alakítottuk +VI-es állapotúvá és a +III-as oxidációs állapotú Am/Cm-ot leválasztottam a NdF_3 -os együttleválasztással, majd a Pu-ot redukálva hidroxilaminnal és Fe(II) ionokkal redukálva a Pu-ot is NdF_3 -os együttleválasztással választottam le.) A kitermelést a felvett alfáspektrumok alapján határoztam meg. Az elválasztás alapja az, hogy csak a +III-as, +IV-es oxidációs állapotú aktinidák kötődnek meg a NdF_3 csapadékon. A Pu szelektíven oxidálható +V-ös, +VI-os állapotig KMnO_4 -tal, miközben az Am és a Cm oxidációs állapota változatlan (+III-as) marad. A módszer alkalmazásakor közvetve kapunk információt az urán koncentrációjáról is. (Az U-nak a Pu frakcióban kell megjelennie, azonban kémiai kitermelése ezen módszer esetén nem ismert.)
- 2.) A további, forró részecskét tartalmazó szűrőmintá-darabok esetében a Pu, Am/Cm és U elválasztását extrakciós kromatográfiával kiviteleztem. A mintákat ekkor is mikrohullámú berendezésben (salétromsavval) tartam fel (lerövidítve ezzel a feltárás idejét), s nyomjelzőt (^{242}Pu , ^{243}Am és ^{232}U) adtam hozzájuk. A Pu, Am/Cm és U izotópokat dipentil-pentil-foszfónáttal (UTEVA), kromatográfiás extrakcióval választottam el. (Az UTEVA-val a $\text{Pu}(\text{NO})_4$ ill. $\text{Th}(\text{NO})_3$ semleges komplexek köthetők meg, míg a +III oxidációs állapotú Am/Cm nem kötődik meg az oszlopon. Az oszlopról a Th frakció sósavval eluálható, mivel a Th-nak nincs erősen kötődő kloridos komplexe. A Pu jóddal +IV-es oxidációs állapotából +III-as oxidációs állapotúvá redukálva szedhető le az oszlopról.) Az alfa-spektrometriás méréshez a kellő vékonyságú forrásokat NdF_3 -os mikroegyüttlesapással készítettem el, mint az előbbi esetben. (A 8.8 ábra ennek az általunk leggyakrabban alkalmazott radiokémiai eljárásnak a folyamatábráját mutatja.)
- 3.) A szűrletminták esetében a primervízből szintén UTEVA-ás kromatográfiás extrakcióval választottam el a Pu, Am/Cm ill. az U izotópokat, előzetes vas-hidroxidos előkoncentráció után. 900ml vízmintát szűrtünk keresztül 0,4 μm -es Millipore membránon, majd a szűrletekhez hozzáadtuk a nyomjelzőket és Fe(II)-t redukálószerként. $\text{Fe}(\text{OH})_2$ csapadékot választottunk le és a csapadékot leszűrtük. A $\text{Fe}(\text{OH})_2$ csapadék felületén megkötö az összes aktinidát. A csapadékot feloldva, majd bepárolva, a mintákat végül 8M HNO_3 -as közegbe vettük fel és hasonlóan a részecskék elválasztásához a folyamatábra (8.8 ábra) szerinti módon felvittük az oszlopra.



8.8. ábra A 2.) elválasztási eljárás folyamatábrája

Az 1.) elválasztási módszer az U frakcióról csak közvetve ad információt, mivel nem választunk el vele külön U frakciót és nem adunk a mintához U nyomjelzőt. Ezt a módszert néhány normálüzemi minta esetében alkalmaztam, amikor az U kimutathatóságára csekély esélyünk volt. Leggyakrabban a 2.) eljárást alkalmaztuk, mely az U mennyiségének pontos meghatározására is alkalmas. A módszer egy vas-hidroxidos előkoncentrációval kibővíve a nagyterefogató vízminták elemzésére is alkalmazható volt.

8.4.2. Az alfaspektrumok felvétele, kiértékelése

A spektrumok felvételéhez Canberra ill. Ortec gyártmányú félvezető (PIPS) detektorokat használtunk. A spektrométerekhez MCA analizátorkártya és Ortec szoftver tartozik. A detektorok hatásfoka az NdF_3 forrásokkal, az általunk használt geometriára a négy detektorra 17,6%, 26,5%, 29% ill. 30% volt. A csúcsok kijelölése kézzel történt, az aktivitásokat relatív módszerrel a nyomjelző izotópokra vonatkoztatva határoztuk meg, az aktivitáseredményeket a kémiai veszteségekkel korrigálva adtuk meg. A spektrumok kiértékeléséhez többnyire Excel-ben írt programot használtunk fel. Az aktivitáskoncentráció szórását a hibaterjedés alapján határoztuk meg 1σ kofidencia-szintre vonatkoztatva. A hibaszámítások a beütésszámok szórását, nyomjelző oldatok aktivitásának szórását, a tömeg ill. a térfogatmérés hibáját vettük figyelembe. A spektrumok kiértékelésének részletei az alábbi munkákban található meg (Kerkápoly, 2001), (BME NTI, 2003). A normálüzemi (ill. üzemzavari) mintákban elemzett alfasugárzó izotópok jellemzőit a melléklet M1. táblázata tartalmazza.

8.4.3. Az alfa-spektrometria mérési eredményei

Az autoradiográfiás felvételek alapján elkülönített részecskéket általában még a radiokémiai elválasztási eljárás előtt lemértem az alfa-spektrometriás mérőrendszeren, s felvett alfa-spektrumok, a mért összaktivitások alapján választottam ki, hogy mely részecskéket érdemes feltárni. (Az elkülönített, majd feltárt részecskék adatait a 8.1 fejezet 8. táblázata tartalmazza.) (A teljes szűrőminták gamma-spektrometriás vizsgálatát többnyire még Pakson a mintavételt követően azonnal elvégezték, hogy a rövid felezési idejű nuklidok aktivitását is megmérhessék. A gamma-spektrometriás eredményekből is következtetni lehetett arra, hogy van-e a zónában nagy valószínűséggel hibás fűtőelem, mivel a szűrőkön mérhető hasadási termékek (pl.: ruténium, cérium izotópok) is a meghibásodás indikátorai.)

A következőkben az autoradiográfiával elkülönített (néhány esetben elektronmikroszkóppal is vizsgált) részecskék alfa-spektrometriás mérési eredményeit ismertetem, melyek normál üzemből származnak. Az alfaaktivitásokat és a szórásokat a 8.8 táblázatok tartalmazzák.

A 2001-es 3-as blokki leállási mintákból elkülönített forró részecskék (8.1. és 8.2. táblázatok) alfa adatai fűtőelem-meghibásodásra utalnak. A forró részecskékben mérhető Pu izotópok alapján arra következtetünk, hogy a zónában makrohibás fűtőelem volt jelen, s a Pu tartalmú részecskék a makrohibán keresztül kerülhettek ki a hűtőközegbe. A részecskékben mérhető Pu mennyisége összhangban van a fűtőelemek állapotának ellenőrzésekor kapott eredményekkel. Mind a BME NTI jódaktivitás méréseken alapuló szakértői rendszere, mind a KFKI AEKI által kidolgozott jód-spiking modellszámítások alapján és a Cs aktivitásarány alapján (4.5. fejezet) a 3-as blokk 16. kampányában (2001 júliusi leállítás) 1 darab makrohibás fűtőelem volt jelen a zónában.

A 2002. augusztusi kampány fűtőelem állapotának elemzése még mindig egy makrohibás fűtőelem jelenlétére utaltak, a zónában nem alakult ki új fűtőelemhiba. A 2001-es, decemberi leterheléskor (teljesítménycsökkentéskor) vett mintákban és a 2002. augusztusi leállási mintákból elkülönített részecskékben mérhető Pu izotópok (8.8. táblázatok) is makrohiba jelenlétére utaltak. (Az urán mérések a legtöbb esetben a detektálási határ közelébe estek, mert az urán mérése alfa-spektrometriával igen nehézkes.)

Izotópok	3/5A	3/5B	3/6B	3/9A	3/12A	3/14A	3/15A1	3/15A2	3/15AF	3/17A
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	5,94E-03	9,83E-03	1,99E-03	9,00E-03	1,06E-02	1,60E-03	5,40E-04	1,36E-03	2,04E-02	1,58E-02
Szórása (Bq)	8,51E-04	1,43E-03	1,22E-04	5,21E-04	3,01E-03	7,05E-04	2,20E-04	8,02E-04	5,24E-03	8,75E-03
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	7,46E-03	1,38E-02	2,01E-03	1,94E-02	1,85E-02	1,80E-03	7,90E-04	1,26E-03	2,34E-02	1,15E-02
Szórása (Bq)	5,23E-04	5,51E-03	2,58E-04	2,81E-03	7,21E-03	7,56E-04	1,55E-04	3,89E-04	1,06E-03	6,88E-03
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	3,10E-03	5,36E-03	1,82E-03	9,60E-03	1,17E-02	1,43E-03	1,31E-03	5,90E-03	7,23E-02	5,36E-02
Szórása (Bq)	8,87E-04	5,66E-04	4,38E-04	8,77E-04	3,52E-03	8,77E-04	5,20E-04	6,55E-04	3,26E-03	4,69E-03
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	L _d [¶] 2,11E-03	3,28E-03	L _d [¶] 8,00E-04	3,60E-03	2,80E-03	6,20E-04	L _d [¶] 2,31E-04	9,30E-04	7,80E-03	2,50E-03
Szórása (Bq)	-	2,36E-04	-	2,10E-04	1,85E-04	1,02E-04	-	2,16E-04	6,55E-04	6,32E-04
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	2,09E-02	2,27E-02	4,74E-03	4,54E-02	1,02E-02	6,60E-03	5,11E-03	3,20E-03	1,18E-01	3,82E-02
Szórása (Bq)	3,68E-03	8,56E-04	1,32E-04	2,33E-03	6,55E-03	4,95E-04	2,81E-04	7,85E-04	2,81E-04	5,94E-03

8.8.a. táblázat 3-as blokki 16. kampány végi leállásakor, 2001. 07. 21-24. között vett normálüzemi mintákból elküldött forró részecskék mért alfaaktivitásai*

* Megjegyzés: Az U izotópok közvetlen mérésére nem került, ezért nem tartalmazza az aktivitásokat a táblázat. A táblázatban szereplő forró részecskék jellemzőit a 8.1. fejezet 8.1. táblázatai foglalják össze.

Izotópok	HP5	HP4A	HP4B
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	9,44E-02	2,72E-02	1,07E-02
Szórása (Bq)	5,18E-03	2,32E-03	1,04E-03
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	2,28E-01	2,78E-02	1,04E-02
Szórása (Bq)	1,22E-03	3,36E-03	9,8E-04
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	4,63E-02	1,65E-02	6,90E-03
Szórása (Bq)	1,87E-03	2,26E-03	1,96E-03
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	4,00E-03	3,1E-03	1,32E-03
Szórása (Bq)	1,63E-03	1,15E-04	1,71E-04
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	6,66E-02	3,91E-02	2,07E-02
Szórása (Bq)	3,05E-03	2,42E-03	1,886E-03
²³⁸ U aktivitása (Bq)	5,30E-04	4,50E-04	3,30E-04
Szórása (Bq)	2,31E-04	1,02E-04	1,21E-04
²³⁴ U aktivitása (Bq)	1,47E-03	8,31E-04	8,53E-04
Szórása (Bq)	1,7E-04	2,5E-05	1,7E-05

Izotópok	3/4	3/5
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	1,31E-03	3,91E-03
Szórása (Bq)	3,80E-04	2,60E-04
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	6,00E-04	4,82E-03
Szórása (Bq)	1,89E-04	2,51E-04
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	9,20E-04	2,03E-03
Szórása (Bq)	1,39E-04	5,12E-04
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	9,82E-03	4,48E-03
Szórása (Bq)	9,20E-04	4,70E-04
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	9,91E-03	1,43E-03
Szórása (Bq)	7,62E-04	4,67E-04
²³⁸ U aktivitása (Bq)	3,E-04	L _d = 2,11E-04
Szórása (Bq)	2,000E-04	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	2,19E-03	L _d = 2,10E-04
Szórása (Bq)	3,01E-04	-

8.8.b. táblázat (baloldali) 3-as blokki 17. kampány, 2001. 12. 25-26. között

(teljesítménycsökkentéskor) vett normálüzemi mintákból elkülönített forró részecskék mért alfaaktivitásai*

8.8.c. táblázat (jobboldali) 3-as blokki 17.kampány, 2002. 08. 18.. között

(leálláskor) vett normálüzemi mintákból elkülönített forró részecskék mért alfaaktivitásai*

Izotópok	PVI	PVII	PVIII	PVIV
²³⁸ Pu aktivitása (Bq/l)	6,30E-03	2,26E-02	2,72E-02	7,43E-02
Szórása (Bq/l)	5,41E-04	3,51E-03	2,33E-03	6,21E-03
^{239,240} Pu aktivitása (Bq/l)	4,11E-03	2,45E-02	2,78E-02	8,62E-02
Szórása (Bq/l)	2,31E-04	2,11E-03	5,61E-03	3,74E-03
²⁴¹ Am aktivitása (Bq/l)	8,49E-03	2,47E-02	8,42E-03	8,24E-03
Szórása (Bq/l)	5,62E-04	2,33E-03	4,36E-04	3,66E-04
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq/l)	1,00E-03	4,90E-03	2,70E-03	2,50E-03
Szórása (Bq/l)	2,32E-04	2,66E-04	3,51E-04	8,21E-04
²⁴² Cm aktivitása (Bq/l)	2,85E-02	3,27E-02	7,32E-02	6,34E-02
Szórása (Bq/l)	3,28E-03	5,81E-03	1,32E-03	3,25E-03
²³⁸ U aktivitása (Bq/l)	1,82E-04	2,68E-04	8,11E-04	1,20E-04
Szórása (Bq/l)	8,45E-05	6,32E-05	2,66E-04	3,66E-05
²³⁴ U aktivitása (Bq/l)	7,19E-04	7,00E-04	3,72E-03	2,59E-03
Szórása (Bq/l)	2,31E-04	1,20E-04	5,67E-04	6,54E-04

8.9. táblázat 3-as blokki 17. kampány, 2001. 12. 25-26. között (teljesítménycsökkentéskor) vett normál üzemi primervíz minták mért alfaaktivitásai*

* A táblázatokban szereplő forró részecskék ill. primervíz minták jellemzőit a 8.1 fejezet 8.1 és 8.2 táblázatai foglalják össze. A mintákban levő ²³⁵U mennyiségét nem tüntettem fel, mivel az összes minta esetében a detektálási érték alá esett. Az L_d (detektálási határ) értékek a ²³⁵U-ra 0,0002-0,003 Bq között voltak.

Néhány esetben sor került primervíz minták elemzésére is. A 2001-es leterheléskor vett vízmintákban is mérhetőek a transzurán izotópok, ami szintén a hibás fűtőelem jelenlétére utal. A vízminták vizsgálatánál elsődleges célunk az urán oldódásának, szemcsékből való kioldódásának vizsgálata volt. Az U izotópok aktivitása az oldatok esetében is detektálási határ közeli volt. A vízminták aktivitása általában jóval alacsonyabb volt az elemzett teljes szűrőminták aktivitásának, ami arra utal, hogy a transzurán elemek a részecskékhez kötött formában vannak jelen a hűtőközegben. (A táblázatok adataiból is látszik, hogy a liternyi vízminták aktivitásai többnyire az egyedi forró részecskék aktivitásának nagyságrendjébe esik.) A 8.9. táblázatban szereplő PVIII vízminta esetében az oldatban található aktinidák össz-alfaaktivitása 0,143 Bq, míg az oldathoz tartozó szűrőn levő össz-alfaaktivitás 1,97 Bq volt. A teljes alfaaktivitásnak tehát csak kb. 7%-a volt jelen oldott formában. A 8.10. táblázat összehasonlítóképp az aktinidák megoszlását mutatja a különböző méretű részecskefrakciók (0,1 és 0,45 µm pórusméretű szűrőkön szűrt frakciók) és az oldat között BME NTI-nél végzett korábbi mérés alapján, valamint a PVIII vízminta esetében.

A BME NTI korábbi mérései alapján is az aktinidáknak nagy része a hasonló eredetű (leálláskor/teljesítménycsökkentéskor vett) primervízminták esetében részecskeformában található meg (ezért a fűtőelemek állapotának értékeléséhez a szűrők vizsgálata elsődleges), általában csak kevesebb, mint 20%-a található meg az oldatban.

Részecskeméret	Aktinida hányad	
	BME- NTI (Vajda, 1994)	PVIII minta
~ 0,45 µm-nél nagyobb	77%	93%
0,1-0,45 µm közötti	8%	Nem vizsgált
0,1 µm-nél kisebb (oldott rész)	15%	7%

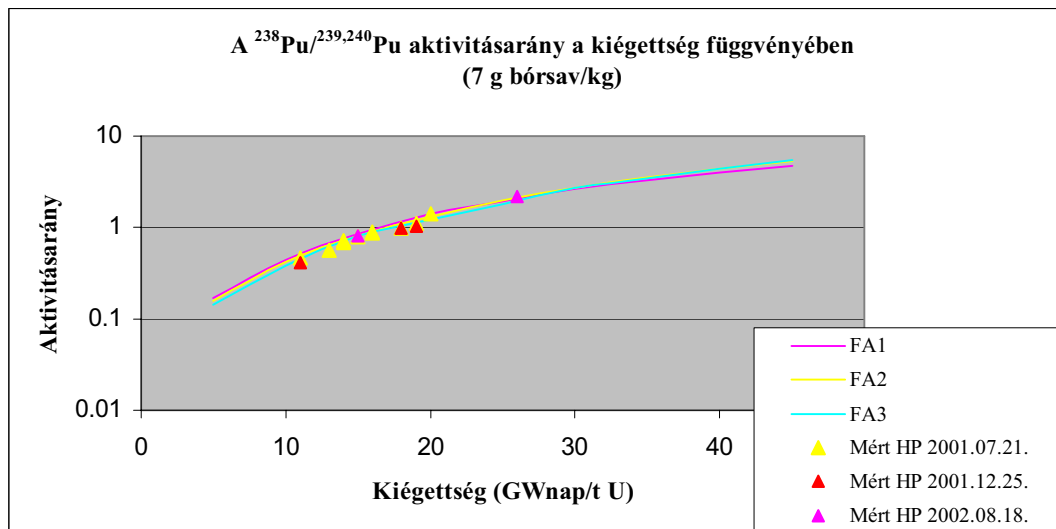
8.10. táblázat Mért aktinida hányad összehasonlítása korábbi mérési eredménnyel azonos eredetű minták esetében

8.4.4. Kiegészítés a normálüzemi minták alapján

A hibás fűtőelemek kiegészítés becslésére több módon is lehetőség van. A hibás fűtőelemek átlagos kiegészítés becslése általában a gamma sugárzó $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ izotópok aktivitásarányából történik, a primervíz mérésével, mert a mobilis Cs a sérült fűtőelem burkolat alól közel homogén eloszlásban kerül ki (nem várható eltérés az axiális eloszlás függvényben). A fűtőelemek átlagos kiegészítése becsülhető csak, ha a zónában több hibás fűtőelem is jelen van. A fűtőelem kiegészítés becslésére lehetőség van az alfa sugárzó Pu, Am/Cm és U izotópok aktivitásának meghatározásával is. A hosszú felezési idejű transzurán izotópok mérése különösen a részecskék elemzésekor fontos, mivel kevésbé oldhatóak, így főként részecskeformában vannak jelen a hűtővízben, ezt mutatták az alfa-spektrometriás méréseink is. A részecskék a sérült fűtőelem lokális jellemzőit hordozzák. A hibás fűtőelemek ill. egyedi részecskék kiegészítés becslésére a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{242}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ ill. a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányainak meghatározásával nyílik lehetőség (4.5. fejezet).

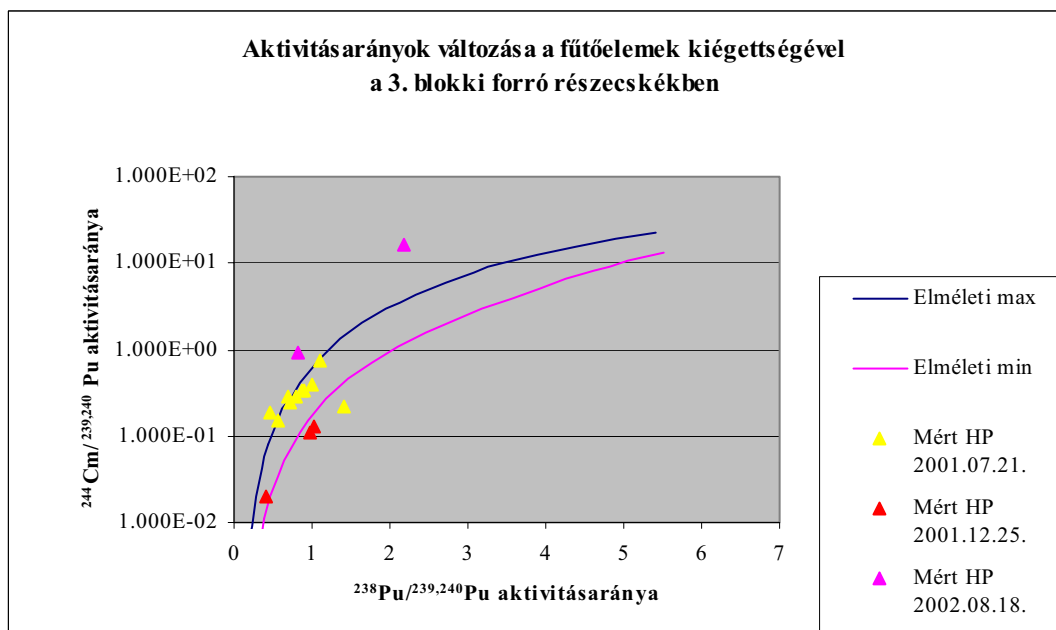
A hűtőközegtől elkülönített forró részecskék esetében a kiegészítés becslése a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ill. a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitás arányaiból történt, mivel ezeket befolyásolják legkevésbé a kiegészítés kívüli egyéb üzemeltetési paraméterek. A Nukleáris Technikai Intézetnél a kiegészítés becsléséhez elméleti értékként a Nessel-Nuko programcsomag alapján számolt adatokat veszik alapul (Vajda, 1994), a részecskék kiegészítés becslésekor is ezeket az értékeket használtam fel.

A 8.9. ábrán a Möller-Burmeister (Möller, 1987) számítások alapján várható $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarány-kiegészítés függvény látható (4.5. fejezet) a mérési pontok feltüntetésével, hogy a normálüzemi mintákban mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok ismeretében a minták kiegészítésére következtethetünk. (A függvényt a 7 g/kg-os bórsav koncentráció esetére adjuk meg, mivel a korábbi 4.1. ábrán látható volt, hogy a bórsav koncentráció nem befolyásolta jelentős mértékben az aktivitásarány-kiegészítés függvényt.)



8.9. ábra A $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitás-arány a kiegettség függvényében (Möller, 1987)

A 8.10. ábrán az elkülönített normálüzemi részecskékben mért $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányokat ábrázoltam a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok függvényében a 8.11. táblázatok alapján. (Az ábrán azokat az értékeket is feltüntettem, melyeknél a ^{244}Cm esetében csak a detektálási határ volt meghatározható, az értékeket a 8.11. táblázat is mutatja, csillaggal megjelölve.) Az ábrán feltüntettem az elméletileg lehetséges maximális és minimális kiegést is a Möller-Burmeister szimuláció alapján, hogy a mért értékeket összehasonlíthassam az elméletileg várható értékekkel. (4.5. fejezet).



8.10 ábra Aktivításarányok változása a fűtőelemek kiegettségével a 3. blokki normálüzemi forró részecskékben

A legmagasabb $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarány a paksi kiegési adatoknak megfelelően 3,5 lehetne, ami kb. 30GWnap/tU átlagos kiegést jelent. A vizsgált részecskék aktivitásarányai nagyrészt beleesnek a várt tartományba (kivéve egy 2002-es részecskét). A normálüzemi részecskék esetében látszik, hogy a részecskék kiegései eltérőek lehetnek.

Az egyedi részecskékben mérhető aktivitásarányokat mindenképpen érdemes összevetni a teljes szűrőmintákban (bulk sample) ill. a vízmintákban mérhető aktivitásarányokkal. A 2001-es augusztusi forró részecskékben mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok 0,46-1,37 között voltak. Ezzel szemben az ugyanezen időszakból származó, teljes szűrőminták (nem egyedi részecskék) $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányai 0,46-0,87 közé estek. Látható, hogy a szűrőminták aktivitásaránya sokkal szűkebb tartományba esik, így átlagosabb kiegésértéket tükröz, míg a részecskékben mérhető aktivitásarányok jellemzőek az egyedi részecskékre, s eltérő kiegésértékeket mutatnak. (Az üzemzavari minták esetében ez még inkább jellemző lesz, 9.4.3. fejezet.) A

részecskékben mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok alapján (8.11. táblázatok) és a 8.9 ábra adatainak felhasználásával becsülhetők az egyedi részecskék kiégésértékei. A 2001-es augusztusi forró részecskékben mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok (0,46-1,37) 12-21GWnap/tU közötti kiégést tükröznek. Ezzel szemben a részecskékhez tartozó teljes szűrőmintákban mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok (0,46-0,87) alapján a kiégés 12-16GWnap/tU közé esik, vagyis kb. 2 éves üzemidőnek felel meg átlagos kiégés esetén.

A 2002-es teljes szűrőminták $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányai magasabbak voltak, a mért értékek 0,87-1,21 közé estek, ezek az értékek 16-20GWnap/tU közötti kiégést mutatnak, vagyis 2-3 éves üzemidőre utalnak.

A mintákból számított átlagos kiégés tehát növekedett, a zónán új hiba nem tűnt fel, csak a korábbi 2001-es meghibásodás fejlődhetett tovább. A 2002-es leállási mintákban csak kevés forró részecske volt kimutatható és elkülöníthető, melyek aktivitásarányai igen eltérőek voltak.

Izotópok	Minták jele									
	3/5A	3/5B	3/6B	3/9A	3/12A	3/14A	3/15A1	3/15A2	3/15AF	3/17A
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	7,96E-01	7,12E-01	9,90E-01	4,64E-01	5,73E-01	8,89E-01	6,84E-01	1,08E+00	8,72E-01	1,37E+00
Relatív szórása	1,59E-01	4,25E-01	1,42E-01	1,56E-01	4,82E-01	6,09E-01	4,52E-01	6,66E-01	2,61E-01	8,15E-01
$^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	≤2,83E-01*	2,38E-01	≤3,98E-01*	1,86E-01	1,51E-01	3,44E-01	≤2,92E-01*	7,38E-01	3,33E-01	2,17E-01
Relatív szórása		4,06E-01		1,56E-01	3,95E-01	4,51E-01		3,86E-01	9,54E-01	6,49E-01

8.11.a. táblázat 3-as blokki 2001. 07. 21-24. között (leálláskor) vett normálüzemi mintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai

Izotópok	HP5	HP4A	HP4B
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	4,14E-01	9,78E-01	1,03E+00
Relatív szórása	5,51E-02	1,48E-01	1,35E-01
$^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	1,75E-02	1,12E-01	1,27E-01
Relatív szórása	4,08E-01	1,26E-01	1,60E-01

Izotópok	3/4	3/5
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	2,18E+00	8,11E-01
Relatív szórása	4,28E-01	8,45E-02
$^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	1,64E+01	9,29E-01
Relatív szórása	3,29E-01	1,17E-01

8.11.b. táblázat (baloldali) 3-as blokki 2001. 12. 25-26. között

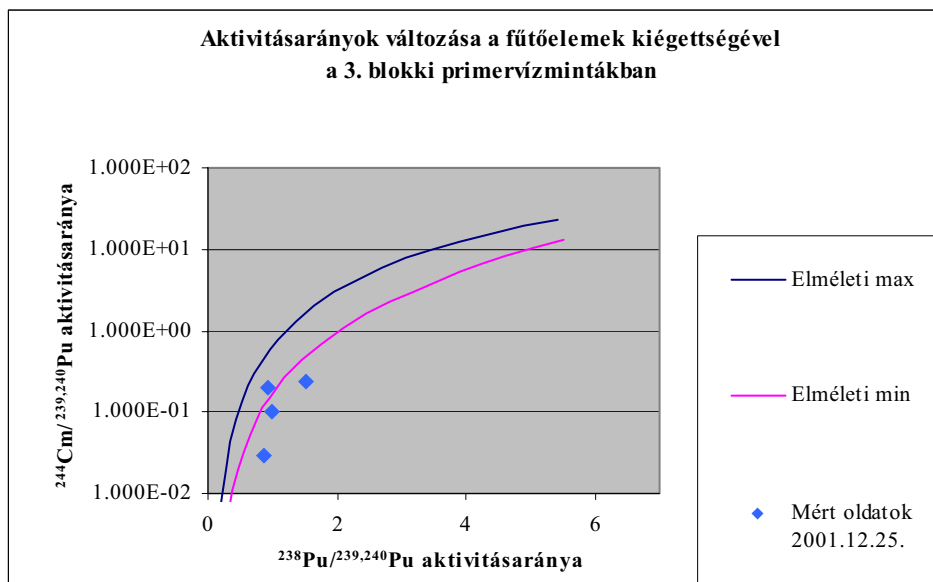
(teljesítménycsökkentéskor) vett normálüzemi mintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai

8.11.c. táblázat (jobboldali) 3-as blokki 2002. 08. 18. között

(leálláskor) vett normálüzemi mintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai

Néhány esetben, amint azt a korábbi 8.9. táblázat mutatja, primervíz mintákat is elemeztem alfa-spektrometrián. Érdekes összehasonlítani az oldatmintákban mérhető aktivitásarányokat is az elméletileg várt értékekkel, valamint érdemes lehet az oldatokban mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok alapján is megbecsülni a kiégést, A 8.11. ábra a vízmintákban mért $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányokat mutatja a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok függvényében.

* A három megjelölt esetben az arányokat L_d (detektálási határ) érték felhasználásával kaptam.



8.11. ábra Aktivitásarányok változása a fűtőelemek kiégetttségével a 3. blokki primervízmintákban (oldat frakció)

Látható, hogy a 2001. decemberi vízmintákban mérhető értékek jelentősen mások, mint az ugyanekkor vett részecskékben mérhető értékek, az oldatok aktivitásarányai közel egyformák mind a négy mintára (8.12. táblázat). Ezek az adatok is mintegy átlagkiégést tükröznek. A vízmintákban mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok 0,86-1,53 közé estek, ami 16-22GWnap/tU közötti kiégésnek fel meg. Ezek az értékek a 2001-es augusztusi leállási mintákban mért értékekhez képest növekvő kiégést mutatnak.

Izotópok	PVI	PVII	PVIII	PVIV
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	1.53E+00	9.22E-01	9.78E-01	8.62E-01
Relatív szórása	1.03E-01	1.78E-01	2.19E-01	9.42E-02
$^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	2.43E-01	2.00E-01	9.71E-02	2.90E-02
Relatív szórása	2.39E-01	1.02E-01	2.40E-01	3.31E-01

8.12. táblázat 3-as blokki 2001. 12. 25-26. között (teljesítménycsökkentéskor) vett normál üzemi primervíz minták aktivitásarányai

A primerköri forró részecskék alfa-spektrometriás elemzéseinek eredményeit összefoglalva megállapítható, hogy a részecskék kiégései igen eltérőek, a részecskék kiégései különböznek mind a teljes szűrőminták, mind a vízminták mérései alapján számított kiégés értékektől. A forró részecskék kiégés értékei kapcsolatba hozhatók az időszakra jellemző fűtőelem-meghibásodásokkal, a hibás fűtőelem lokális kiégését tükrözik.

9. Üzemzavari vizsgálatok

9.1. Elemzett üzemzavari minták

A paksi atomerőműnél 2003. áprilisában történt üzemzavar következtében mintegy 800 m³-nyi víz szennyeződött. A kikerült aktivitás egy része oldott, másik része részecske formában jutott ki a 1.sz. akna (valamint közvetve a pihentető medence és a reaktortartály) vizébe. A vízminták (ill. a víz szűrése nyomán keletkező szűrőminták) gamma-spektrometriás vizsgálata, alfa-spektrometriás mérése mellett a primerkörü részecskék vizsgálatára kidolgozott részecskeanalitikai módszerekkel az üzemzavari minták esetében elvégeztük egyedi részecskék elemzését is.

Az üzemzavari vízmintákat a pihentető medencéből, valamint amíg a pihentető medence, az 1.sz. akna és 2. blokk reaktorának vize keveredett egymással, esetenként a reaktor vizéből vették. (Az 5. fejezet tartalmazza az üzemzavar részleteit). A Millipore 0,4 µm pórusméretű szűrőmintákon a 2. blokki pihentető medence vizéből ill. a reaktorvizből mindössze 0,5-2,5 ml-nyit szűrtünk át, a minták nagy aktivitásából adódóan.

Néhány esetben mód volt nemcsak a vízmintával kapcsolatos részecskéket elemezni, hanem dörzsmintákról vett részecskék elemzésére is sor került.

A 9.1. táblázatokban az üzemzavarral kapcsolatosan elemzett minták adatait tartalmazza. A táblázatban található rövidítések az alábbiak: AR: autoradiográfia, SEM: elektronmikroszkóp, α-sp.(F): alfaspektrometria (feldolgozással), α: összalfa mérés. A mérési körülmények azonosak a 8.1. fejezetben ismertetettekkel.

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
TGG	pihentető medence	2003. 04. 17. (Feldolgozás ideje: 2003. 08. -09. között)	AR, SEM, α-sp.(F)
TGD	vizéből szűrt egyedi,		AR, SEM
ME1F	autoradiográfiával		AR, SEM
ME1A	elkülönített részecske		AR, SEM
ME2B	(szűrő pórusmérete 0,1 µm volt)		AR, SEM, α-sp.(F)
YA2	reaktorvizből szűrt		AR, SEM, α-sp.(F)
YA2E	egyedi, autoradiográfiával		AR, SEM, α-sp.(F)
YA2F	elkülönített részecske		AR, SEM, α-sp.(F)
YA2D	(szűrő pórusmérete 0,1 µm volt)		AR, SEM

9.1.a. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
N1	pihentető medence vizéből szűrt egyedi, autoradiográfiával elkülönített részecske (szűrő pórusmérete 0,1 µm volt)	2004. 02. 02.	AR, α-sp.(F)
N2			AR, α-sp.(F)
N3			AR, α-sp.(F)
ULAP			AR, α-sp.(F)
O1			AR, α-sp.(F)
M1			AR, α-sp.(F)
M2			AR, α-sp.(F)
S1			AR, α-sp.(F)
S2			AR, α-sp.(F)
N4			AR, SEM, α
L1			AR, SEM, α
I1			AR, SEM, α
J2			AR, SEM, α

9.1.b. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
A HP	pihentető medence vizéből szűrt egyedi, autoradiográfiával elkülönített részecske (szűrő pórusmérete 0,1 µm volt)	2004. 04. 19.	AR, α-sp.(F)
B HP			AR, α-sp.(F)
C HP			AR, α-sp.(F)
D HP			AR, α-sp.(F)
E HP			AR, α-sp.(F)
F HP			AR, α-sp.(F)
G HP			AR, SEM, α-sp.(F)
H HP			AR, SEM, α-sp.(F)

9.1.c. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
1A HP	pihentető medence vizéből szűrt egyedi, autoradiográfiával elkülönített részecske (szűrő pórusmérete 0,1 µm volt)	2004. 07. 13.	AR, α-sp.(F)
1B HP			AR, α-sp.(F)
2A HP			AR, α-sp.(F)

9.1.d. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

Forró részecskék jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
Dörzs B	Friss fűtőelem felületéről vett dörzsmintából elkülönített részecske autoradiográfia alapján-a fűtőelem a pihentetőmedencében kontaminálódott az üzemzavar következtében)	2003. 08. 25.	AR, SEM, α-sp.(F)
Dörzs C			AR, SEM, α-sp.(F)
KGO1E	KGO tokról vett dörzsmintáról szuszpenzióba vitt részecskék részecske Millipore membránra szűrve, a membránról (0,4 µm) autoradiográfia alján lett elkülönítve	2003.12.08.	AR, α-sp.(F)
KGO2F			AR, α-sp.(F)
KG1		2003.11.28.	AR, SEM, α-sp.
KG2			AR, SEM, α-sp.

9.2. táblázat Üzemzavari (dörzsmintáról elkülönített) részecskék adatai és a vizsgálatukhoz alkalmazott módszerek

9.2. Üzemzavari minták autoradiográfias vizsgálata

Hasonlóan a normálüzemi szűrőmintákhoz, a mintákat lakkal fűjtam le, hogy a részecskék helyét rögzítsem. A dörzsmintákon is lakkal rögzítettem a részecskéket. A mintákhoz általában közvetlenül hozzászorítottam a filmet és a minta össz-alfa aktivitásától, típusától függően pár percig, óráig vagy napig exponáltam. Néhány különösen nagyaktivitású üzemzavari minta esetében, a minták és a film közé alufóliát helyeztünk (sugárvédelmi okok miatt). Az alufóliával megakadályozható volt, hogy a film kissé ragadós, emulziós réteggel ellátott oldala esetleg a nagyaktivitású mintába beleragadjon, valamint kellően vékony volt ahhoz, hogy a képek minőségét (felbontását) ne rontsa el számottevően. Tapasztalataim szerint az alufóliával készített filmek is jó felbontásúak, jól értékelhetők voltak. (Az alufólia árnyékoló hatását megvizsgáltam alfa-spektrométerrel is. Az Amersham (²³⁹Pu, ²⁴¹Am, ²⁴⁴Cm) kalibráló-forrással végzett mérés a spektrum kisenergiák felé történő eltolódását és összenyomódását mutatta, azonban a teljes beütésszámnak csak harmad része nyelődött el az 1 rétegnyi (0,01 mm vastag) alufóliában, ezzel magyarázhatóak a jól értékelhető autoradiográfias képek.)

9.2.1. A üzemzavari szűrők felvételeinek jellemzői, részecskék relatív feketedés eredményeinek vizsgálata

A 9.3. és 9.4. táblázatok a későbbiekben mikro- ill. radioanalitikai vizsgálatokkal elemzett üzemzavari részecskék relatív (nettó) feketedés értékeit valamint a relatív (nettó) feketedés/exponálási idő hányadosokat tartalmazza. A relatív feketedés/exponálási idő hányadosok szórását alapvetően a feketedések szórása határozza meg az üzemzavari részecskék esetében is, így ezeket nem tüntettem fel külön a táblázatban. Az üzemzavari részecskék esetében a relatív feketedés/exponálási idő hányadosok szórása 1-5% közé esett ill. 3 részecske esetében 24% volt. A későbbiekben elemzett részecskék relatív feketedését mutatják a következő táblázatok.

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
TGG	85	5	2650 perc	1,93
TGD	87	8		1,97
ME1F	116	4	4320 perc	1,61
ME1A	81	11		1,13
ME2B	75	3	4205 perc	1,07
YA2	116	7		1,66
YA2E	120	2	4320perc	1,67
YA2F	120	2		1,67
YA2D	116	2		1,61

9.3.a. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék relatív feketedései

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
N1	100	4	1420 perc	4,23
N2	102	8		4,31
N3	102	6		4,31
ULAP	92	4		3,89
O1	102	4		4,31
M1	92	4		3,89
M2	83	5		3,51
S1	94	7		3,97
S2	92	4		3,89
N4	103	8		4,35
L1	97	3	1410 perc	4,13
I1	99	3		4,21
J2	106	3		4,51

9.3.b. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék relatív feketedései

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
A HP	154	4	1780 perc, 1 réteg alufólia	5,19
B HP	167	4		5,63
C HP	158	3	1780 perc, 1 réteg alufólia	5,33
D HP	62	15		2,09
E HP	68	14	1780 perc, 1 réteg alufólia	2,29
F HP	62	15		2,09
G HP	110	9	4520 perc, 1 réteg alufólia	1,46
H HP	112	9		1,49

9.3.c. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék relatív feketedései

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
1A HP	163	4	2640 perc, 1 réteg alufólia	3,70
1B HP	167	4		3,79
2A HP	173	4		3,93

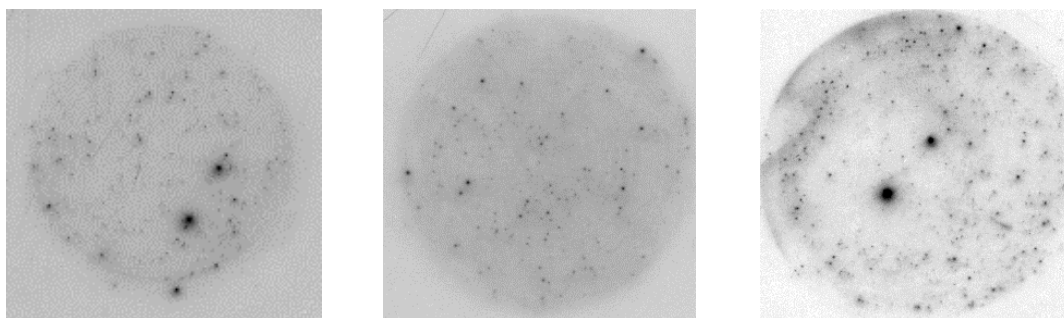
9.3.d. táblázat Üzemzavari (vízmintából elkülönített) részecskék relatív feketedései

Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
Dörzs B	108	2	1310 perc	4,95
Dörzs C	121	1	1310 perc	5,54
KGO1E	90	2	1190 perc	4,53
KGO2F	98	2		4,94
KG1	95	3	1550 perc	3,68
KG2	111	3		4,30

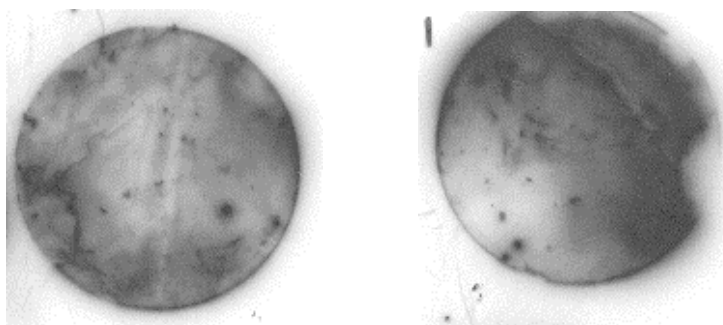
9.4. táblázat Üzemzavari (dörzsmintáról elkülönített) részecskék relatív feketedései

Az üzemzavari részecskékről készített autoradiográfias felvételek alapján is megállapítható, hogy a relatív feketedés /exponálási idő értékek egy nagyságrenden belül változtak. (A relatív feketedés „pontatlanságát” (az összes alfa intenzitás és a relatív feketedés közti arányosság torzulását) okozhatja néhány esetben a film telítődése is, de mivel nem volt szükség a feketedés pontos meghatározásához, így filmek ilyen kalibrációjával nem foglalkoztunk a felvét elkészítése előtt.) Az értéket befolyásolhatta a néhány esetben alkalmazott alufólia, amit minta és a film közé helyeztem el. Mivel a feketedés értékek alapján az aktivitás becslése nem volt célunk és a kép minőségét az alufólia nem befolyásolta, így ez nem okozott problémát. Összehasonlítva a normálüzemi és üzemzavari mintákra kapott relatív feketedés/exponálási idő értékeket, megállapítható, hogy egy nagyságrendbe esnek. (Ugyanez nem mondható el, ha ezeket az arányokat összehasonlítjuk a lényegesen kisebb aktivitású környezeti mintákra vonatkozó arányokkal, 10.2.3. fejezet.) Az üzemzavari részecskék esetében a relatív feketedés/exponálási idő értékek (alufóliás takarás nélküli felvételek esetében) 1,07-5,54 közé estek, alufóliás takarással készített felvételeken levő részecskék esetében 1,46-5,19 közé esett. Az alufóliás takarás nélküli felvételeken levő részecskék relatív feketedés/exponálási idő átlaga 3,42 volt, az alufóliás takarásos felvételeken szereplő részecskéknél az átlag 4,41 volt.

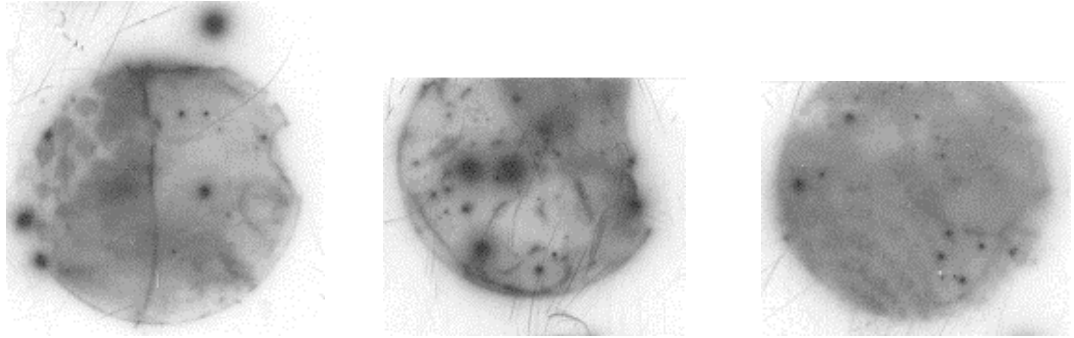
Az alábbiakban (9.1.-9.6. ábrák) néhány üzemzavari szűrő- ill. dörzsmintáról készített autoradiográfias felvétel látható. A felvételeken látható forró részecskék relatív feketedéseit tartalmazta a korábbi táblázat. A részecskék alfa-spektrometriás elemzéseinek eredményeit a későbbi fejezetekben részletezzük. Néhány felvétel esetében a képek szürkeségét (fedettségét) átállítottam (a felvételek kiértékelése után), hogy azok nyomtatott formában is megfelelő minőségűek legyenek.



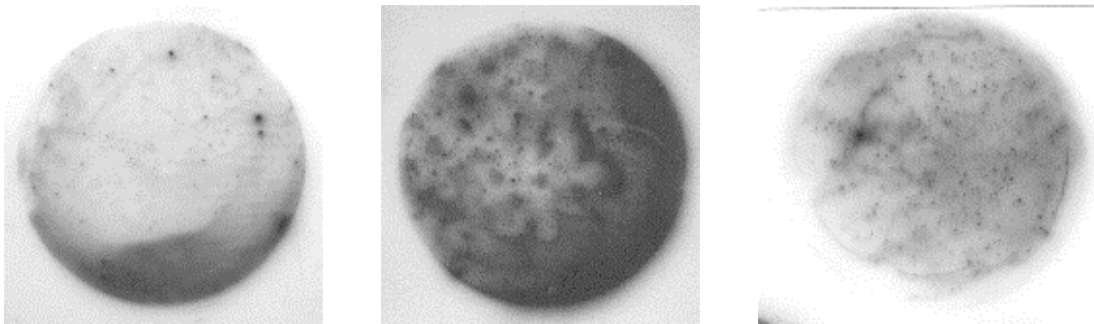
9.1. a-b-c. ábra 2003. 04. 17- vízmintha szűrőin levő YA2 (baloldali szűrő), M1A (középső szűrő) és YA2E jelű részecske (jobb oldali szűrő)



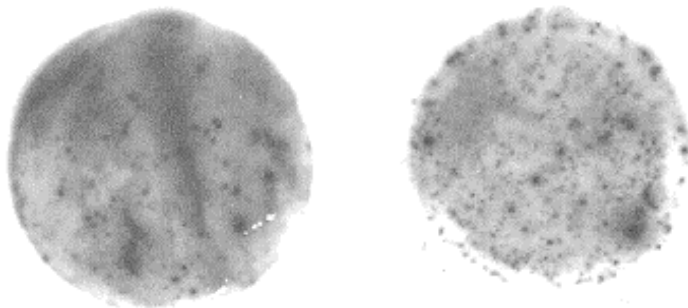
9.2. a-b ábra 2004. 02. 02-i L1(baloldali szűrő) és I (jobb oldali szűrő) jelű részecske



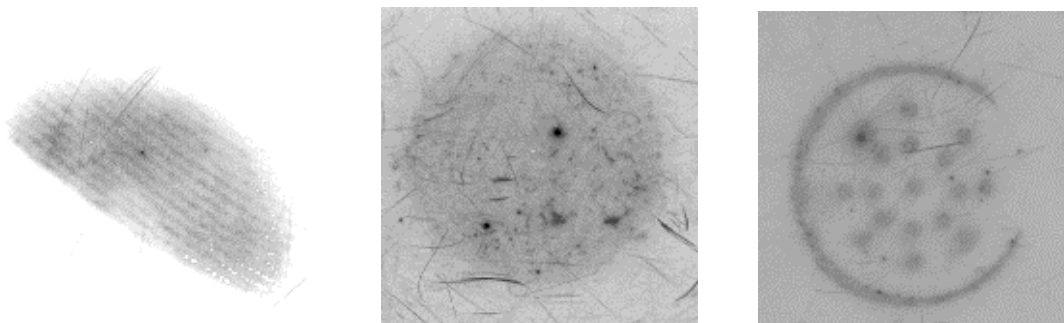
9.3. a-b-c. ábra 2004. 02. 02-i szűrőn (baloldali kép) levő S1 és S2 jelű részecskék és a szűrő mellé esett, üveglapon levő részecske (ULAP jelű részecske), 2004. 02. 02-i szűrőn (középső) levő N1 és N2, N3, N4 jelű részecskék, a 2004. 02. 02-i szűrőn (jobboldali) levő O1 jelű részecske



9.4 a-b-c. ábra 2004. 04. 19- i szűrőkön levő GHP (baloldali szűrőn), FHP (középső szűrőn) és CHP (jobboldali) jelű részecskék



9.5. a-b. ábra 2004. 07. 13-i szűrőkön levő 1A,1B (baloldali szűrőn) ill. 2A (jobboldali szűrőn) jelű részecskék



9.6. a-b-c. ábra C jelű részecske (baloldali kép) a 2003. 08. 25-i mintáról valamint 2003.12.08-i dörzsmintáról lesuszpendáltatott részecskék Millipore membránon (KGO1E (középső szűrőn) és KGO2F (jobboldali szűrőn) részecskével)

A szűrőkön található mikroméretű részecskék térbeli eloszlása, helye jól vizsgálható az autoradiográfias képek alapján (bár a szűrők mintázata nem rajzolódik ki minden esetben), a részecskék azonosítása után a részecskék elkülönítése is kivitelezhető volt. A textil dörzsmintáról készített kép felbontása rosszabb, mint a Millipore membránokról készített felvételek felbontása, ami azzal magyarázható, hogy a film a dörzsmintához nem tud olyan szorosan illeszkedni, mint a membránokhoz.

9.2.2. Részecskék mennyiségének, eloszlásának, a részecskék okozta feketedések méretének vizsgálata

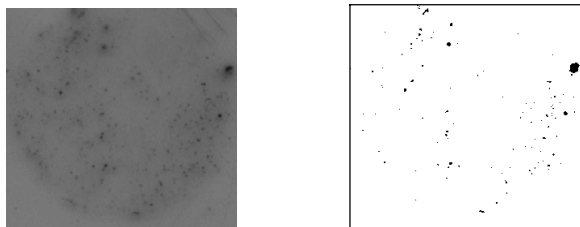
A vízminták szűrőiről készített felvételeken látszik, hogy a részecskesűrűség (a szűrő felületegységére eső részecskék száma) igen eltérő. A szemcsék méretének, számának becslése az üzembizari szűrők esetében is a MATLAB programmal történt, a normálüzemi minták vizsgálatánál leírt módon (8.2.2 fejezet).

A 9.5. táblázatban néhány üzembizari szűrőre kapott eredmény látható. (A szűrők autoradiográfias képeit az előzőekben bemutattam ill. a mellékletben megtalálhatóak. A szűrők mindegyikéről különíttem el részecskét, ezek adatait a 9.1. és 9.2. táblázatok tartalmazzák, a részecskék relatív feketedés értékei megtalálhatóak a korábbi 9.3.-9.4. táblázatokban.)

Az üzembizart követően a pihentető medencéből ill. reaktorból vett vízmintákban, kezdetben nagy mennyiségű, sokféle méretű részecske volt kiszűrhető. Ha összehasonlítjuk (8.4. és 9.5. táblázat összehasonlítása) a normálüzemi mintákkal a részecskesűrűséget, kb. 3 nagyságrend a különbség, ugyanis a bemutatott normálüzemi szűrőkön 1 l-nyi, míg a bemutatott üzembizari szűrőkön 1ml-nyi vizet szűrtünk át, (melyet általában 100 ml térfogatnyi vízmintából vettünk ki).

Meg kell jegyezni, hogy az üzembizart követő időszakban a minták autoradiográfias vizsgálatára nem volt idő, így a 2003. 04. 17-i minták szűrése is csak később, augusztusban ill. szeptemberben történt meg. A részecskék sűrűségeloszlásába, méretébe ezért nemcsak oldódási, hanem kiülepedési folyamatok is szerepet játszhatnak, habár a szűrés előtt az oldatokat minden esetben erősen felráztuk, hogy a kiülepedés, edényhez való adszorpció hatását csökkentsük.

A 2003. 04. 17-i szűrőkön relatíve nagy számú részecske található, vannak szűrők (ME1C, ME1E) melyeken 30-nál több egyedi részecske különböztethető meg a programmal. Példaként az YA2C szűrő képének autoradiográfias ill. a MATLAB programmal megszürt fekete-fehér képe látható.



9.7.a-b. ábra YA2C szűrő autoradiográfias felvétele (baloldali) és a MATLAB programmal kapott levágott fekete-fehér képe (jobboldali)

A későbbi mintákban már kevesebb kisebb méretű szemcsével lehet találkozni, azonban a szűrők aktivitása igen magas volt (2004. 02. 02-i szűrők), ami homogénebb szennyeződéssel magyarázható. A 2004. 02. 02-i szűrők közül (például a 9.5 táblázatban is szereplő L és I jelű mintáknál) sokszor a programmal nem lehetett részecskéket elkülöníteni, a szűrők magas, közel homogén szennyezettsége miatt (sötétszürke képe miatt). Valószínűleg a kisebb szemcsék feloldódásával magyarázható mindez. A 2004. júliusi mintákon ismét nagyobb számban található részecskék. A táblázatban szereplő 2A jelű szűrőn több apróbb részecske különíthető el, mint a 2004. 04. 19-i szűrők esetében. (A részecskék mennyiségének változását szemléltetik a mellékletben található további autoradiográfias felvételek is, M8.-M19. ábrák.) (A szennyezettséget akkor tekinthetjük a képfeldolgozás szempontjából homogénnek, ha nagyon alacsony levágási küszöb mellett sem lehet min. 4 képpont nagyságú részecskéket elkülöníteni. Tapasztalatom szerint a 4 képpontnál kisebb méretű szemcsék általában már csak a film felületének hibáiból adódnak és nem köthetők ténylegesen forró részecskékhez, ezért a 4 képpont vagy annál nagyon kiterjedésű szemcsék összeszámolását végeztem csak el (8.2.2 fejezet).)

A részecskesűrűséget kis mértékben befolyásolhatja az exponálási idő megválasztása is, bár az exponálási idő beállításánál törekedtem rá, hogy mindig jól értékelhető felvételeket kapjak. (Néhány minta esetében, ahol szükséges volt, többféle exponálási idővel is készítettem felvételeket, hogy megfelelő képet kapjak). A 2004. 02 -i, 2004.04-i ill. 2004. 07-i minták esetében az exponálási idő növelése nehezebbé tette volna a részecskék azonosítását a szűrőminták közel homogén szennyezettsége miatt, a felvételeken levő szűrők sötétszürke színe miatt.

Teljes szűrő kódja	Mintavétel ideje	Exponálási idő (perc)	Összes részecske száma (db)	Szemcsék mérete (pixel)	Adott méretű részecskék száma (db)
YA2	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4205	6	71	1
				48	1
				16	1
				5	1
				4	2
M1	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4320	13	13	2
				11	1
				9	1
				8	2
				6	3
				5	1
YA2E	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4320	19	4	3
				180	1
				78	1
				16	1
				7	2
				6	1
YA2F	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4320	12	5	1
				4	12
				116	1
				25	1
				21	1
				16	1
YA2C	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4320	27	11	1
				8	1
				5	1
				4	5
				117	1
				21	1
				20	1
				19	1
				12	1
11	3				
ME1B	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4320	30	8	2
				7	3
				6	6
				5	1
				4	7
				22	1
				19	1
				15	1
				14	1
				13	2
				12	2
ME1C	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4320	37	11	1
				10	1
				8	5
				7	1
				6	3
				5	2
				4	9
				63	1
				60	1
				54	1
				28	1
				27	1
				23	1
				18	1
				16	1
15	2				
14	2				
13	1				
12	1				
10	4				
9	2				
8	2				
7	2				
6	1				
5	4				
4	8				

ME1E	2003. 04. 17. Minta szűrésének ideje: 2003. 08.	4320	33	27	1
				22	1
				21	1
				20	1
				17	1
				16	1
				12	2
				11	1
				9	2
				8	1
				7	4
				6	5
				5	5
				4	7
S	2004. 02. 02.	1420	6	84	1
				30	1
				16	2
				9	1
				8	1
N	2004. 02. 02.	1420	11	163	1
				97	1
				70	1
				57	1
				44	1
				9	1
				8	2
				6	1
				5	1
				4	1
O	2004. 02. 02.	1420	8	62	1
				13	2
				12	2
				8	1
				5	1
4	1				
L	2004. 02. 02.	1410	A programmal a homogén szennyeződés miatt, a részecskék nem különíthetők el.		
I	2004. 02. 02.	1410	A programmal a homogén szennyeződés miatt, a részecskék nem különíthetők el.		
CHP	2004. 04. 19.	1780	1	28	1
GHP	2004. 04. 19.	4250	2	9	1
				4	1
2A	2004. 07. 13.	2640	9	83	1
				22	1
				21	1
				18	1
				16	1
				7	1
				5	1
4	2				
1AB	2004. 07. 13.	2640	A programmal a homogén szennyeződés miatt, a részecskék nem különíthetők el.		

9.5 táblázat Üzemzavari szűrők „szemcsestatistikája”

A részecskék okozta feketedések méretének vizsgálatakor fontos megemlíteni, hogy a feketedések mérete nem feltétlen csak a részecskék méretével, hanem azok aktivitásával is kapcsolatban van. A részecskék számának nagyfokú ingadozását valószínűleg a részecskék oldódása okozza. Az üzemzavart követően az oldott hányad/részecskefrakció aktivitásának aránya igen széles tartományban ingadozott, ahogyan azt a 9.4.2. fejezetben található mérési eredmények is mutatják.

9.3. Üzemzavari minták elektronmikroszkópos vizsgálata

A 2003. áprilisi paksi üzemzavar után a rutinmérések elvégzését követően lehetőség nyílt az üzemzavari mintákból is elkülöníteni forró részecskéket az elektronmikroszkópos, valamint az alfa-spektrometriás mérésekhez.

Elektronmikroszkóppal vizsgáltunk üzemzavari vízből szűréssel elkülönített és autoradiográfiával azonosított ill. dörzsmintákról autoradiográfiával azonosított részecskéket. A mintaelőkészítés részleteit, a minták adatait a 9.1. fejezetben ismertetem.

Az üzemzavari minták vizsgálata során fő célunk az U ill. az egyéb fűtőelemsérülések miatt kikerült elemek kimutatása volt. Az elemzések során többnyire, hasonlóan a normálüzemi mintákhoz, a részecskék itt is főként korróziós termékeket tartalmaztak, bár lényegesen kisebb mennyiségben, mint korábban, (az üzemzavart előidéző tisztítási eljárás következtében).

9.3.1. Az alkalmazott elektronmikroszkópos technika és alkalmazott eszközök

Az elektronmikroszkópos elemzések elvégzése a normálüzemi minták elemzésével megegyező módon történtek, ugyanazon két berendezéssel (8.3.1 és 8.3.2 fejezet). Az elektronmikroszkópos vizsgálatokat Pintérné Dr. Csordás Tóth Anna végezte (KFKI AEKI).

9.3.2. Az elektronmikroszkópos vizsgálatok eredményei és a korróziós nuklidok eredetének vizsgálata üzemzavari részecskék esetében

Az üzemzavart követően elsőként - a minták nagy aktivitása miatt - autoradiográfias felvételek készítése nélkül próbáltunk meg részecskéket elemezni elektronmikroszkóppal. Ezekben az esetekben 1 l vizet szűrtünk át a Millipore membránokon, majd 1-2 mm²-es területeket vágtam ki belőlük az elektronmikroszkópos vizsgálatokhoz. A minták nagy aktivitása miatt feltételeztük, hogy a kivágott mintaterület biztosan tartalmaz részecskét. Az ezt követő elektronmikroszkópos elemzések bebizonyították az autoradiográfias vizsgálatok szükségességét az elektronmikroszkópos vizsgálatokhoz történő minta előkészítésénél.

A normálüzemi minták esetén a csekély részecskeszám miatt az autoradiográfias felvételek azért feltételen szükségesek, hogy az elektronmikroszkópos vizsgálatok sikeresek lehessenek, ténylegesen detektálhassunk vele szemcséket. Az üzemzavari minták esetében a nagy részecskeszám okozhat problémát, itt már előfordulhatnak olyan esetek, hogy a vízminta hígításával, az autoradiográfia alapján elkülöníthető (kevesebb részecskét tartalmazó) szűrőterületek elkülönítésével tehető az elektronmikroszkópos vizsgálatok hatékonyabbá. Az autoradiográfias felvétel készítése nélkül kiválasztott szűrőminta részletek a nagyobb méretű szemcsék mellett sűrűn tartalmaztak apró méretű szemcséket, amelyek jelenléte rendkívül nehézkessé tette az egyedi szemcsék vizsgálatát, a szemcsék elkülönítését a SEM felvételek alapján.

A későbbiekben a szűrőre vitt vízminták mennyiségének csökkentésével (ezáltal a minták aktivitásának csökkentésével) lehetővé tettük az autoradiográfias felvételek készítését, majd a felvételek alapján történő részecske elkülönítést a további mikroanalitikai (SEM) ill. radioanalitikai vizsgálatokhoz (alfa-spektrometria). A továbbiakban ezeknek a részecskéknél, részecskehalmozatoknak az elektronmikroszkópos eredményeit foglaljuk össze.

2003. 04. 17-i mintákból elkülönített részecskehalmozatok (TGG, TGD, ME1F, ME1A, ME2B, YA2, YA2E, YA2F, YA2D jelű forró részecskék) összetételét vizsgáltuk elsőként elektronmikroszkóppal. (Ezeknek a részecskéknél az adatait a korábbi 9.1.a. táblázat tartalmazza.) A pihentető medencéből ill. vele egybenyitott reaktorvízből vett mintákban található szemcsék mérete a néhány tized μm -estől a néhány μm -esig ill. 20-30 μm -ig terjedt. A szemcsék főként korróziós komponenseket tartalmaztak, de kevesebbet, mint a korábbi minták. A kisebb mennyiségű korróziós termék (az üzemzavart előidéző) tisztítási eljárással magyarázható. A mintákban nem volt detektálható mennyiségű urán sem. A korábban gyakran detektált Zr is csak mint szennyező jelent meg a szemcsékben. A minták fő elemi alkotói Fe ill. Fe-oxidok voltak. Néhány minta esetében a szemcsék Ni-ben ill. Cr-ban voltak gazdagok. Szennyezőként Si-ot, Mg-ot, Cl-t, S-t találtak.

Néhány minta esetében lehetőség volt a minták oxigéntartalmának mérésére is (8.3.2. fejezet). A vas-oxigén tartalom kimérésével a mintákban található vas-oxidok megjelenési formáját lehetett részletesebben megvizsgálni. A Fe és O mennyiségének arányából következtettem a vas-oxidok legvalószínűbb megjelenési formáira, figyelembe véve a primerkörben előfordulható korróziós szemcsék lehetséges elméleti összetételét (8.5. táblázat).

A minták többnyire elemi formában ill. FeO formájában tartalmazzák a vasat, de előfordultak Fe₂O₃ (hematit) vagy Fe₃O₄ (magnetit) jelenlétére utaló tömegarányok is egyes szemcséknél.

2003. 04. 17-i mintákból elkülönített TGG és az YA2 jelű forró részecskéket alkotó mikrométeres szemcsék összetételét mutatom be (atomszázalékban) a 9.6. és 9.7. táblázatokban. A 9.6.a. táblázat a TGG részecskét alkotó néhány Fe-Cr tartalmú szemcséjének, a 9.6.b. táblázat néhány Fe-Ni tartalmú szemcséjének elemzését mutatja. Az YA2 minta összetételét a 9.7. táblázat mutatja be. A táblázatok utolsó oszlopa szemcsék eredetéről ad felvilágosítást, melyet a lehetséges elméleti összetételek figyelembevételével adtam meg.

TGG minta néhány szemcséjének kvantitatív EDX eredményei						
	Elem (atom %)					Lehetséges fő összetevő
Szemcse jele	O	Cl	Ca	Cr	Fe	
G1	15	3,3	8,3	3,1	70	Fe/Cr oxid
G2	16	3,8	8,0	3,0	69	Fe/Cr oxid
G6	18	3,5	0	2,5	77	Fe/Cr oxid
G10	12	3,6	0	1,5	88	Fe/Cr oxid

9.6.a. táblázat A TGG jelű forró részecskét alkotó mikrométeres méretű szemcsék kvantitatív EDX eredményei és a szemcsék lehetséges fő összetevői

TGG minta néhány szemcséjének kvantitatív EDX eredményei						
	Elem (atom %)					Lehetséges fő összetevő
Szemcse jele	O	Cl	Ca	Fe	Ni	
G4	21	2,3	0,88	66	10,3	Fe/Ni oxid
G5	21	2,2	0,62	70,3	5,8	Fe/Ni oxid
G7	23	2,6	0	68	5,7	Fe/Ni oxid
G11	19	1,9	0	71	8,8	Fe/Ni oxid

9.6.b. táblázat A TGG jelű forró részecskét alkotó mikrométeres méretű szemcsék kvantitatív EDX eredményei és a szemcsék lehetséges fő összetevői

YA2 minta néhány szemcséjének kvantitatív EDX eredményei													
Szemcse jele	Elem (atom %)												Lehetséges fő összetevő
	O	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Cr	Mn	Fe	Ni	Zr	
YA21	54	0	0	0	0	0	0	0	0	47	0	0	FeO
YA22	50	0,96	9,1	0	0	0	0	0	7,7	33	0	0	Hematit/ +Mn/Al oxid
YA24	51	0	2,4	1,1	1,2	0	2,1	0	0	42	0	0	Magnetit/hematit+ egyéb oxidok a szennyezőkből
YA29	7,9	0	0	0	0	0	0	3,9	0	4,0	88	0	Fe/Ni oxid

9.7. táblázat A YA2 jelű forró részecskét alkotó mikrométeres méretű szemcsék kvantitatív EDX eredményei és a szemcsék lehetséges fő összetevői

A 9.6. táblázatok, hasonlóan a normálüzemi részecskék vizsgálatához (8.3.4 fejezet) azt mutatják, hogy a Cr ill. Ni tartalmú szemcsékben az összetevők aránya nem felel meg az elméleti Cr-spinel, Ni-ferrit vagy egyéb Cr-Fe-Ni-oxid összetételnek.

A 9.7. táblázat adatait összehasonlítva a szemcsék lehetséges elméleti összetételével (korábbi 8.5. táblázat) látható, hogy a főként Fe-at és O-t tartalmazó szemcsék az YA2 jelű mintában az elméleti értékekhez képest igen eltérő arányban tartalmazzák a Fe-at és az O-t, valamint tartalmaztak szennyezőket is kis mennyiségben. Nem találtam tiszta hematit vagy magnetit tartalmú szemcsét.

A részecskékben mért összetétel alapján - hasonlóan a normálüzemi részecskék esetéhez (8.3.4. fejezet) - nem adható meg egyértelműen, hogy a szemcsék a reaktor mely szerkezeti eleméről származnak.

A 2004. 02. 02-i vízmintából három elkülönített részecskét vizsgáltunk elektronmikroszkóppal (L1, I1, J2 jelű részecskéket vizsgáltuk, melyek adatait a 9.1.b. táblázat tartalmazza részletesen). A mintákban többnyire korróziós szemcséket lehetett kimutatni, Ni-Fe, Fe-Cr és Fe-Cr-Ni dús szemcsék voltak detektálhatók.

Szennyezőként Mg, Sn, Na volt jelen a mintákban. Egyes szemcsék nagy mennyiségben tartalmaztak Zr-ot, valamint a korróziós szemcsék mellett a fűtőelem-sérülésre utaló Ce-dús szemcséket is sikerült kimutatni.

2004. 04. 19-i mintavételből származó részecskék (G HP és H HP, melyek adatai 9.1.c. táblázatban találhatóak meg) is főként korróziós szemcséket, Fe-Cr ill. Fe-Ni dús szemcséket tartalmaztak. A részecskék mérete néhány μm -tól a 20-30 μm -ig terjedt.

A minták összetételének meghatározása mellett sor került ún. „blank” („háttér”) minták mérésére is, ekkor néhány jellemző alapanyagot elemeztünk. Felmerült, hogy a mintákban levő szennyezőanyagok egy része a vízben levő bórsavból származhat. Ezt ellenőrizendő Merck gyártmányú bórsav ill. technikai tisztaságú bórsav összetételét határoztuk meg. A Merck gyártmányú bórsav tisztának bizonyult, míg a technikai tisztaságú bórsavban Si, Ca és K fordult elő. A technikai bórsav vizes oldatának szűrletét is megvizsgáltunk Nuclepore membránra szűrve. Ebben a blank mintában előfordult O, Na, Mg, Al, Si, Cl, K, Ca, Cu, Ba, S is. A szennyező szemcsék néhányszor 10 μm -esek voltak.

Néhány esetben nemcsak vízmintából vett forró részecskék vizsgálatára kerülhetett sor az üzemzavar kapcsán. Friss fűtőelem felületéről ill. KGO tok felületéről vett dörzsmintákon is azonosítottunk forró részecskéket. A fűtőelemeket, KGO tokokat a pihentető medencében tárolták az üzemzavar ideje alatt és így az üzemzavar következtében felületük beszennyeződött.

Friss fűtőelemről vett dörzsmintákról autoradiográfiával különítettem el részecskéket (Dörzs B, Dörzs C jelű részecskék adatai megtalálhatók a 9.2. táblázatban), melyeket elektronmikroszkóppal is megvizsgáltunk. A dörzsmintákon kevés számú részecske volt látható, melyek főként Fe-at, Cr-ot, Ni-t tartalmaztak. Néhány esetben, a részecskékben a W és Zr dúsult fel. (A vízmintákból kiszűrt részecskék ezzel szemben igen kevés esetben tartalmaztak Zr-ot.)

A dörzsminták esetében is vizsgáltunk blank mintát. Tiszta dörzsszövetanyagot elemeztünk meg, amin Ca dús szemcsék voltak, ill. szennyezőként Mg, Si, Na, K, Cl és Pb is előfordult egyes szemcsékben.

A KGO tokokról vett (KG1 és KG2) mintákban található részecskék mérete 1-8 μm közötti volt. Néhány esetben 20-30 μm -es részecskéket is találtunk. A mintákban található szemcsék főként korróziós szemcsék, Mg-szilikátok ill. Zr-ban, Pb-ban Cu-ban ill. Ba-S-ben dús szemcsék voltak. A Zr dús szemcsék mérete néhány μm volt, míg a korróziós szemcsék, Pb-ban dús szemcsék mérete a 10-20-30 μm -est is elérte. A korróziós szemcsék összetétele változatos volt, Fe-Ni, Fe-Cr tartalmú szemcsék voltak főként, kísérő elemként Si-ot, S-t, Cl-t, Al-t, K-t lehetett kimutatni. U-t kis mennyiségben egy Ni-Fe dús szemcsénél lehetett kimutatni. A szemcse mérete 10 μm * 3 μm -es volt és hasáb alakú.

Összefoglalva, az üzemzavar következtében kikerült forró részecskék arányaiban kevesebb korróziós terméket tartalmaztak, mint a normálüzemi primerköri részecskék, feltételezhetően az üzemzavart megelőző tisztítási eljárás következtében. A transzurán izotópok ill. urán kimutatása általában ezekben a mintákban sem volt sikeres az elektronmikroszkópos mérésekkel.

9.4. Üzemzavari minták radioanalitikai vizsgálata, alfa-spektrometria

A 2003 áprilisi üzemzavart követően a hűtővízben található egyedi nagyaktivitású részecskék alfa-spektrometriájával is értékes információkat szerezhattünk a tisztítótartályban elhelyezett fűtőelemek károsodásáról. Adaptálva a normál üzemi forró részecskék vizsgálatára kidolgozott radioanalitikai módszereket az üzemzavar során sokkal nagyobb számban kikerült, jóval nagyobb aktivitású részecskék egyedi elemzése vált lehetségessé a részecskék autoradiográfiás felvételek alapján történő elkülönítése után.

9.4.1. Radiokémiai elválasztási eljárás és mérés

Az üzemzavari részecskékből a Pu, Am/Cm, U elválasztása a normálüzemi részecskénél alkalmazott eljárással történt. Az alkalmazott mérés technika részleteit a normálüzemi részecske elemzéseknél a 8.4.1. és 8.4.2. fejezetben lehet megtalálni. Az üzemzavari mintákban elemzett alfasugárzó izotópok jellemzőit a melléklet M1. táblázata tartalmazza.

9.4.2. Az alfa-spektrometria mérési eredményei

Az üzemzavar után egy ideig csak a nagy számú vízminta rutinszerű gamma-spektrometriás ill. alfa-spektrometriás mérésére kerülhetett sor, azonban mivel az aktivitás egy része részecske formában került ki, fontossá vált az egyedi részecskék elemzése is.

A szűrőmintákról autoradiográfiával elkülönített részecskéket egyes esetekben elektronmikroszkóppal is megvizsgáltuk a roncsolásos analízis megkezdése előtt. Az alfa-spektrometriás mérések során az üzemzavari részecskék esetében is a mintákban levő Pu, Am/Cm ill. U izotópok aktivitását határoztam meg a szükséges radiokémiai elválasztási eljárás után. Az alfa-spektrometriára „érdemes” részecskéket itt is összalfa mérés ill. gyorsan kivitelezhető gamma-spektrometriás mérés alapján választottam ki. (A részecskékben feldúsuló gammasugárzó Ce izotópok jól mérhetőek voltak a kikerült fűtőelem-részecskékben.)

Az 9.8. és 9.9. táblázatokban az üzemzavart követően vett vízmintákból vett részecskék alfa-spektrometriás eredményeit mutatom be. A vízmintákat az üzemzavart követően eltérő időpontokban vették, a pihentető medencéből ill. a kezdetben a reaktorvízből is, mivel az is szennyeződött a medencék egybenyitottsága miatt, (az üzemzavar részletei az 5. fejezetben találhatók).

Izotópok	TGG	ME2B	YA2	YA2E	YA2F
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	6,10E-03	6,13E-03	L _d =2,60E-04	2,60E-03	1,69E-03
Szórása (Bq)	1,00E-03	5,4E-04	-	3,1E-04	5,0E-04
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	1,10E-03	9,11E-04	L _d =1,41E-04	4,00E-04	1,21E-03
Szórása (Bq)	4,5E-04	3,01E-04	-	1,55E-04	2,5E-04
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	5,54E-03	2,78E-03	L _d =1,08E-03	2,33E-03	1,88E-03
Szórása (Bq)	1,82E-03	1,21E-03	-	6,7E-04	1,0E-03
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	3,41E-02	9,89E-03	L _d =1,11E-03	1,47E-02	5,25E-03
Szórása (Bq)	3,13E-03	1,25E-03	-	9E-04	8,7E-04
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	3,35E-01	5,61E-03	7,12E-03	8,88E-03	L _d =2,97E-03
Szórása (Bq)	1,0E-02	1,02E-03	6,0E-04	7,3E-04	-
²³⁸ U aktivitása (Bq)	7,10E-04	L _d =6,0E-04	4,90E-04	1,32E-04	L _d =1,01E-03
Szórása (Bq)	3,24E-04	-	1,1E-04	8,7E-05	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	3,39E-04	1,20E-02	1,27E-03	1,48E-03	2,4E-03
Szórása (Bq)	3,00E-04	2,0E-03	1,9E-04	1,7E-04	6,6E-04
²³⁵ U aktivitása (Bq)	3,40E-04	L _d =5,1E-04	2,90E-04	1,33E-04	L _d =1,00E-03
Szórása (Bq)	3,0E-04	-	1,22E-04	8,7E-05	-

9.8.a táblázat 2003.04.17-i üzemzavari mintákból elkülönített forró részecskék mért alfaaktivitásai*

9.8.b táblázat (Lásd a következő oldalon) 2004.02.02-i üzemzavari mintákból elkülönített forró részecskék mért alfaaktivitásai.

* A táblázatokban szereplő forró részecskék jellemzőit a 9.1 fejezet 9.1 táblázatai foglalják össze.

Izotópok	N1	N2	N3	ULAP	O1	M2	S1	S2	M1	N4
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	6,31E-03	1,81E-03	3,24E-03	1,00E-02	4,1E-04	4,40E-03	2,64E-02	1,40E-03	2,30E-03	1,81E-03
Szórása (Bq)	4,6E-04	4,1E-04	5,4E-04	8,1E-04	1,1E-04	5,9E-04	1,1E-03	2,8E-04	4,2E-04	4,1E-04
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	2,22E-03	3,00E-04	1,87E-03	4,6E-02	1,89E-03	1,31E-03	L _d =1,19E-03	4,00E-04	4,00E-04	6,00E-04
Szórása (Bq)	2,64E-04	1,0E-04	2,7E-04	6,5E-03	2,6E-04	4,1E-04	-	8,5E-05	2,3E-04	1,5E-04
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	3,68E-03	6,14E-03	4,95E-03	6,07E-02	2,97E-02	1,63E-02	3,70E-02	3,16E-02	3,02E-02	2,92E-02
Szórása (Bq)	9,0E-04	1,9E-03	1,6E-03	1,7E-03	2,6E-03	2,6E-03	2,2E-03	2,6E-03	3,5E-03	2,7E-03
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	2,64E-02	1,79E-01	1,66E-01	1,88E-01	6,76E-03	4,05E-02	9,68E-02	9,14E-02	8,95E-02	9,05E-02
órása (Bq)	1,3E-03	2,0E-03	1,0E-02	4E-03	4,2E-04	3,6E-03	3,5E-03	3,6E-03	5,2E-03	4,3E-03
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	1,77E-01	1,4	9,78E-01	9,90E-01	3,43E-01	1,95E-01	4,24E-01	5,29E-02	6,49E-01	6,44E-01
Szórása (Bq)	3,5E-03	3E-03	2,8E-02	1,4E-02	1,0E-02	7E-03	8E-03	1,1E-02	2E-03	1E-03
²³⁸ U aktivitása (Bq)	3,60E-04	4,42E-04	L _d =4,13E-04	4,80E-04	2,7E-04	4,80E-04	5,10E-04	1,40E-03	L _d =1,95E-02	L _d =3E-04
Szórása (Bq)	2,7E-04	1,6E-04	-	1,3E-04	1,0E-04	2,2E-04	1,3E-04	1,5E-04	-	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	3,02E-03	7,33E-04	1,06E-03	1,34E-03	2,81E-04	1,03E-03	1,72E-03	3,34E-03	L _d =1,67E-02	5,40E-04
Szórása (Bq)	3,7E-04	2,8E-04	2,0E-04	2,4E-04	2,0E-04	2,5E-04	1,7E-04	2,6E-04	-	1,2E-04
²³⁵ U aktivitása (Bq)	L _d =7,00E-04	2,24E-04	1,88E-03	L _d =4,13E-04	1,73E-04	2,40E-04	4,53E-04	1,04E-03	L _d =1,67E-02	L _d =1,50E-04
Szórása (Bq)	-	1,81E-04	1,3E-04	-	1,33E-04	2,22E-04	1,10E-04	1,60E-04	-	-

Izotópok	A HP	B HP	C HP	D HP	E HP	F HP	G HP	H HP
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	5,79E-02	1,25E-01	1,59E-03	5,69E-02	3,64E-02	2,09E-02	1,93E-02	6,66E-02
Szórása (Bq)	1,2E-03	2E-03	7,1E-04	1,5E-03	1,1E-03	8,8E-04	6,04E-04	1,7E-03
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	4,33E-02	1,02E-01	9,90E-03	4,31E-02	2,82E-02	1,42E-02	2,48E-02	3,31E-02
Szórása (Bq)	1E-04	2E-03	5,0E-04	1,3E-03	8,7E-03	8,0E-04	7,36E-04	1,5E-03
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	2,60E-02	4,93E-02	1,22E-02	5,39E-02	6,17E-02	4,34E-02	3,95E-02	1,87E-02
Szórása (Bq)	8,1E-03	1,2E-03	7,0E-04	1,2E-03	2,1E-03	1,2E-03	1,5E-03	8E-04
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	3,87E-02	5,91E-02	1,59E-02	5,83E-02	1,03E-01	5,01E-02	2,08E-02	2,75E-02
Szórása (Bq)	1,0E-03	1,2E-03	8E-04	1,3E-03	2,9E-03	1,3E-03	1,1E-03	9E-04
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	1,83E-01	1,80E-01	7,32E-02	1,86E-01	4,90E-01	1,22E-01	1,70E-02	8,39E-02
Szórása (Bq)	3E-03	3E-03	1,9E-03	3E-03	8,5E-03	2E-03	9,5E-03	1,7E-03
²³⁸ U aktivitása (Bq)	4,90E-04	5,10E-04	1,47E-03	L _d =2,0E-04	L _d =2,0E-04	3,10E-03	L _d =1,1E-03	L _d =1,1E-03
Szórása (Bq)	1,3E-04	1,0E-04	3,1E-04	-	-	2,0E-04	-	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	1,41E-03	5,30E-04	6,30E-03	1,20E-03	1,33E-03	8,00E-03	L _d =1,1E-03	L _d =1,1E-03
Szórása (Bq)	1,3E-04	1,0E-04	5,0E-03	1,5E-04	2,7E-04	3,0E-04	-	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	5,10E-04	5,34E-04	2,25E-03	L _d =2,2E-04	L _d =4,0E-04	3,24E-03	L _d =1,10E-03	L _d =1,10E-03
Szórása (Bq)	1,21E-04	1,00E-04	3,7E-04	-	-	2,00E-03	-	-
	04	04				03		

9.8.c táblázat 2004.04.19-i üzemszavari mintákból elkülönített forró részecskék mért alfaaktivitásai*

* A táblázatokban szereplő forró részecskék jellemzőit a 9.1 fejezet 9.1 táblázatai foglalják össze.

Izotópok	1A HP	1B HP	2A HP
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	1,65E-02	2,12E-02	4,22E-03
Szórása (Bq)	8E-04	1,0E-03	8,6E-04
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	2,14E-02	1,14E-02	3,62E-03
Szórása (Bq)	8E-04	7,0E-04	6,0E-04
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	4,55E-02	9,42E-02	1,18E-02
Szórása (Bq)	2,7E-03	3,5E-03	1,0E-03
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	1,04E-01	3,84E-02	1,49E-02
Szórása (Bq)	3E-03	2,3E-03	1,0E-03
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	4,62E-01	3,33E-02	5,40E-02
Szórása (Bq)	9E-03	3E-04	1,8E-03
²³⁸ U aktivitása (Bq)	4,90E-04	L _d =2,0E-04	6,0E-04
Szórása (Bq)	1,3E-04	-	4,0E-04
²³⁴ U aktivitása (Bq)	1,41E-03	9,10E-04	6,0E-04
Szórása (Bq)	2,0E-04	2,00E-04	6,2E-04
²³⁵ U aktivitása (Bq)	5,10E-04	L _d =2,0E-04	1,13E-03
Szórása (Bq)	1,21E-04	-	3,9E-04

9.8.d táblázat (felső táblázat) 2004.07.13-i üzemzavari mintákból elkülönített forró részecskék mért alfaaktivitásai*

Izotópok	KGO1E	KGO2F	Dörzs B	Dörzs C
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	1,30E-03	4,30E-03	1,76E-01	1,60E-02
Szórása (Bq)	3,2E-04	4,9E-04	3E-03	1,1E-03
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	7,00E-04	2,00E-03	1,44E-01	1,15E-02
Szórása (Bq)	1,4E-04	3,2E-04	2E-03	8,6E-04
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	1,58E-02	1,12E-02	6,65E-02	1,05E-02
Szórása (Bq)	8,4E-03	2,9E-03	1,7E-03	1,0E-03
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	L _d =2,04E-02	3,02E-02	2,01E-01	3,46E-02
Szórása (Bq)	-	3,9E-03	4E-03	1,7E-03
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	5,28E-03	2,16E-01	1,03	1,88E-01
Szórása (Bq)	9,3E-04	1,0E-02	2E-02	4,2E-03
²³⁸ U aktivitása (Bq)	L _d =3,0E-04	L _d =4E-04	L _d =3,0E-03	L _d =2E-04
Szórása (Bq)	-	-	-	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	9,30E-03	7,90E-04	1,36E-03	1,03E-03
Szórása (Bq)	1,6E-04	1,7E-04	2,0E-04	1,4E-04
²³⁵ U aktivitása (Bq)	1,40E-04	L _d =4,1E-04	2,10E-04	L _d =3E-04
Szórása (Bq)	1,04E-04	-	1,24E-04	-

9.9 táblázat 2003.12.08-i ill. 2003.08.25-i dörzsmintákról elkülönített részecskék

* A táblázatokban szereplő forró részecskék jellemzőit a 9.1 fejezet 9.1.ill. 9.2 táblázatai foglalják össze.

A mért alfaaktivitás adatok az üzemzavari minták esetében is mutatják, hogy részecskék aktivitásai igen eltérőek lehetnek. A mért alfaaktivitás értékeket elsőként a normálüzemi mintákban mért aktivitásokkal érdemes összehasonlítani.

A részecskékben lemerített Pu izotópok aktivitása általában nem lényegesen volt nagyobb a normálüzemi mintákban mérhető aktivitásoknál. Példaként a ^{238}Pu aktivitása a normálüzemi minták esetében $5,4 \cdot 10^{-4}$ - $9,44 \cdot 10^{-2}$ Bq közti volt, míg az üzemzavari részecskék esetében $4,1 \cdot 10^{-4}$ - $1,25 \cdot 10^{-1}$ Bq között volt. A $^{239,240}\text{Pu}$ aktivitása a normálüzemi részecskékre $7,9 \cdot 10^{-4}$ - $2,78 \cdot 10^{-2}$ Bq, az üzemzavari részecskékre $4 \cdot 10^{-4}$ - $1,02 \cdot 10^{-1}$ Bq között volt.

A Cm izotópok aktivitása magasabb volt az üzemzavari mintákban. A normálüzemi mintákból elkülönített részecskék esetén a ^{244}Cm mért aktivitása $6,2 \cdot 10^{-4}$ - $7,8 \cdot 10^{-3}$ Bq közé esett, míg az üzemzavari részecskékben mérhető aktivitás $9,89 \cdot 10^{-3}$ - $1,88 \cdot 10^{-1}$ Bq. A ^{242}Cm aktivitása a normálüzemi részecskékénél $3,2 \cdot 10^{-3}$ - $1,81 \cdot 10^{-1}$ Bq közötti érték volt, míg az üzemzavariaknál $8,83 \cdot 10^{-3}$ - $1,4$ Bq közti. (Az YA2E jelű részecske Am/Cm spektruma a 2.9.3. fejezetben látható példaként.)

A dörzsmintákról elkülönített forró részecskék aktivitásai is hasonlóak voltak a szűrőmintákon levőkhöz, ezekben a mintákban is magas volt a Cm izotópok aktivitása. A dörzsmintákról vett részecskék esetében is látható, hogy a minták aktivitása igen eltérő. A ^{238}Pu aktivitása a dörzsmintákról vett részecskékben $1,30 \cdot 10^{-3}$ - $1,76 \cdot 10^{-1}$ Bq között volt, a $^{239,240}\text{Pu}$ aktivitása $7 \cdot 10^{-4}$ - $1,44 \cdot 10^{-1}$ Bq közé esett. A ^{244}Cm mért aktivitása $3,02 \cdot 10^{-2}$ - $2,01 \cdot 10^{-1}$ Bq közé esett, míg a ^{242}Cm aktivitása $5,28 \cdot 10^{-3}$ - $1,03$ Bq közti volt.

Érdeemes a szűrletminták és a szűrők (részecskefrakciók) aktivitását is összehasonlítani (9.10. táblázat). Szemben a normálüzemi mérési adatokkal (ahol a részecske hányad általában több volt, mint 20%), az üzemzavari minták esetében az aktivitás oldott hányada sokszor szokatlanul magas volt. A magas oldott hányad különösen jellemző volt a kezdeti időszakra, később a technológiai beavatkozások következtében ez változott. Az oldatok összes alfaaktivitása a vizsgált időszakban a néhány 100 Bq/l-től a néhány 100 kBq/l-ig tartó tartományba esett, több mint 10^2 - 10^5 -szer magasabb volt a normálüzemi értékeknél.

Minta kódja (eredete)	Mintavétel ideje	Részecskefrakció (szűrők) alfaaktivitása/összes alfaaktivitás (%)
YA2	2003. 4. 17. 4:40	13
ME1	2003. 4. 17. 4:45	11
YA3	2003. 4. 17. 12:50	6
ME2	2003. 4. 17. 12:50	16
ME97	2004. 2. 2. 6:15	42
ME98	2004. 2. 4. 7:00	18
TG130	2004. 4. 19. 6:30	87
TG153	2004. 7. 12. 6:30	90

9.10. táblázat Az üzemzavari minták szűrőinek alfaaktivitása az összes alfaaktivitáshoz képest*

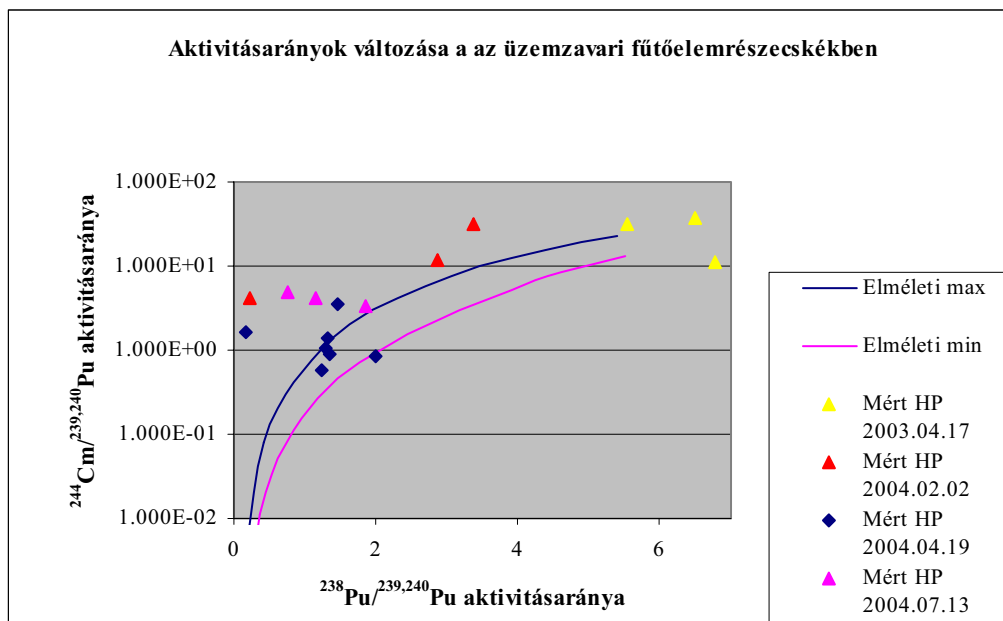
9.4.3. Kiegészítés az üzemzavari minták esetében

Az üzemzavari minták esetében is sor került a kikerült részecskék kiegészítésének becslésére. A hosszú felezési idejű transzurán izotópok mérése az üzemzavari részecskék elemzésekor is fontos, mivel kevésbé oldhatók, a részecskefrakcióban is megtalálhatók a hűtőközegben, nemcsak az oldott fázisban, dacára hogy az üzemzavari elemzések azt mutatták, hogy az aktivitásnak egy jelentősebb hányada oldott formában van jelen. A normálüzemi mintákból elkülönített forró részecskékre kidolgozott módszert adaptáltunk az üzemzavari részecskék esetében is a kiegészítés becsléséhez. Az egyedi részecskék kiegészítésének becslését ezekben az esetekben is a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, ($^{242}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$) ill. a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitás arányok meghatározása alapján végeztem el (8.4.4. fejezet).

A hűtőközegből elkülönített üzemzavari forró részecskék esetében is a kiegészítés becslése a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ill. a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitás arányaiból történt hasonlóan a normálüzemi minták esetéhez, mivel ezeket befolyásolják legkevésbé az üzemeltetési paraméterek a kiegészítésen kívül. Az üzemzavari részecskék kiegészítésének becslésekor a Möller-Burmeister számítások alapján várható $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarány-kiegítés függvényt használtam fel (8.4.4. fejezet).

* A TG és ME jelű minták a pihentető medencéből származnak, míg az YA jelűek a reaktorból (Ezt mutatják a korábbi minta adatokat tartalmazó 9.1. táblázatok is.). Az YA2 és YA3 mintavételek a pihentető medence és a reaktor vize még egybe volt nyitva.

A 9.8. ábrán a vízmintákból elkülönített, üzemzavari részecskékben mért $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányokat ábráztuk a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok függvényében.



9.8. ábra Aktivítárányok változása a fűtőelemek kiégettségével az üzemzavari forró részecskékben

A 9.8. ábrán szereplő részecskék kiégetése hasonlóan a mért transzurán izotópok aktivitásához igen eltérő volt. A részecskékben mérhető $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarány 0,16-6,78 közötti volt, ami 5-55 GWnap/tU-os kiégetésnek felel meg. A 9.11. táblázatok részletesen mutatják az aktivitásarányokat és azok relatív szórását a különböző mintavételi időpontok szerint csoportosítva a részecskéket. Látható, hogy a vizsgált üzemzavari részecskék között nagyon alacsony és nagyon magas kiégettség is előfordult. A üzemzavart követő időszakban mért részecskék kiégetése sokszor különösen magas volt, magasabb, mint az elméletileg maximálisan várható kiégetés. (A PA Rt. RFO számításai szerint a sérült kazettákban lehetséges maximális kiégetés az axiális eloszlás figyelembevételével 32GW/tU lehet, míg a kazetták átlagos kiégetése 16,7 GWnap/tU.) Mivel a Cm izotópok aktivitása a balesetet követő mintavételek során mindvégig nagy volt, így a $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarány is felülmúlja az átlagot a vizsgált részecskék esetében. Az elméleti maximális értéknél magasabb kiégetést okozhatja a tabletták egyenetlen kiégetése. A fűtőelemsérülés következtében kikerülő részecskék/fűtőelemtörmelékek nagy része a tabletták pereméről származhat (különösen az üzemzavart közvetlenül követő mintavételi időszakban), s ez magyarázhatja a részecskék magas kiégetését. A tabletták szélén (a peremrétegében, a „rim” rétegben) ugyanis magas a tableta lokális kiégetése.

Izotópok	TGG	ME2B	YA2	YA2E	YA2F
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	5.55E+00	6.73E+00	1,84E+00*	6.50E+00	1.40E+00
Relatív szórása	4.41E-01	3.42E-01		4.05E-01	3.61E-01
$^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	3.10E+01	1.09E+01	7,87E+00*	3.68E+01	4.34E+00
Relatív szórása	4.19E-01	3.54E-01		3.92E-01	2.65E-01

9.11.a. táblázat 2003.04.17-i üzemzavari mintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai

* Megjegyzés: A * -al jelölt esetekben az arányokat L_d érték felhasználásával kaptam.

Izotópok	N1	N2	N3	ULAP	O1	M2	S1	S2	M1	N4
²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu aktivitás- aránya	2.84E+ +00	6.03E+ 00	1.73E+ 00	2.17E- 01	2.17E- 01	3.36E+ 00	2,22E+ 01*	3.50E+ 00	5.75E+ 00	3.02E+ 00
Relatív szórása	1.39E- 01	4.03E- 01	2.21E- 01	1.63E- 01	3.02E- 01	3.40E- 01		2.92E- 01	6.03E- 01	3.37E- 01
²⁴⁴ Cm/ ^{239,240} Pu aktivitás- aránya	1.19E+ +01	5.97E+ 02	8.88E+ 01	4.09E+ 00	3.58E+ 00	3.09E+ 01	7,68E+ 01*	2.29E+ 02	2.24E+ 02	1.51E+ 02
Relatív szórása	1.29E- 01	3.34E- 01	1.56E- 01	1.43E- 01	1.51E- 01	3.25E- 01		2.16E- 01	5.78E- 01	2.54E- 01

9.11.b. táblázat 2004.02.02-i üzemzavari mintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai

Izotópok	A HP	B HP	C HP	D HP	E HP	F HP	G HP	H HP
²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu aktivitás-aránya	1.34E+00	1.23E+00	1.61E-01	1.32E+00	1.29E+00	1.47E+00	7.78E-01	2.01E+00
Relatív szórása	2.09E-02	2.53E-02	4.49E-01	4.01E-02	3.10E-01	7.03E-02	4.31E-02	5.20E-02
²⁴⁴ Cm/ ^{239,240} Pu aktivitás-aránya	8.94E-01	5.79E-01	1.61E+00	1.35E+00	3.65E+00	3.53E+00	8.39E-01	8.31E-01
Relatív szórása	2.59E-02	2.82E-02	7.13E-02	3.75E-02	3.10E-01	6.20E-02	6.06E-02	5.59E-02

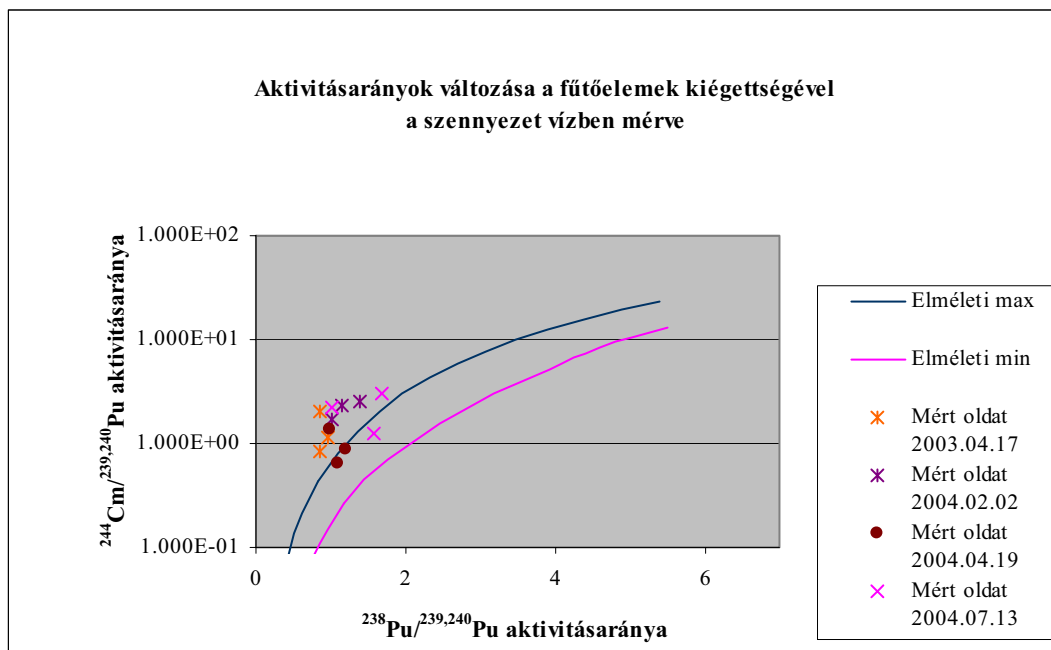
9.11.c. táblázat 2004.04.19-i üzemzavari mintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai

Izotópok	1A HP	1B HP	2A HP
²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu aktivitásaránya	7.71E-01	1.86E+00	1.17E+00
Relatív szórása	6.12E-02	7.74E-02	2.63E-01
²⁴⁴ Cm/ ^{239,240} Pu aktivitásaránya	4.86E+00	3.37E+00	4.12E+00
Relatív szórása	4.72E-02	8.58E-02	1.79E-01

9.11.d. táblázat 2004.07.13-i üzemzavari mintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai

A részecskékben mérhető aktivitásarányokat érdemes összehasonlítani az oldott frakcióban levő aktivitásarányokkal, különös tekintettel arra, hogy az üzemzavari minták esetében az aktivitás egy jelentős része

(akár 50% is) nem részecskeformában, hanem oldott formában volt jelen a hűtőközegben (9.10 táblázat). Az alábbi ábra az oldatban mérhető aktivitásarányokat mutatja, ugyanebből az időszakból.



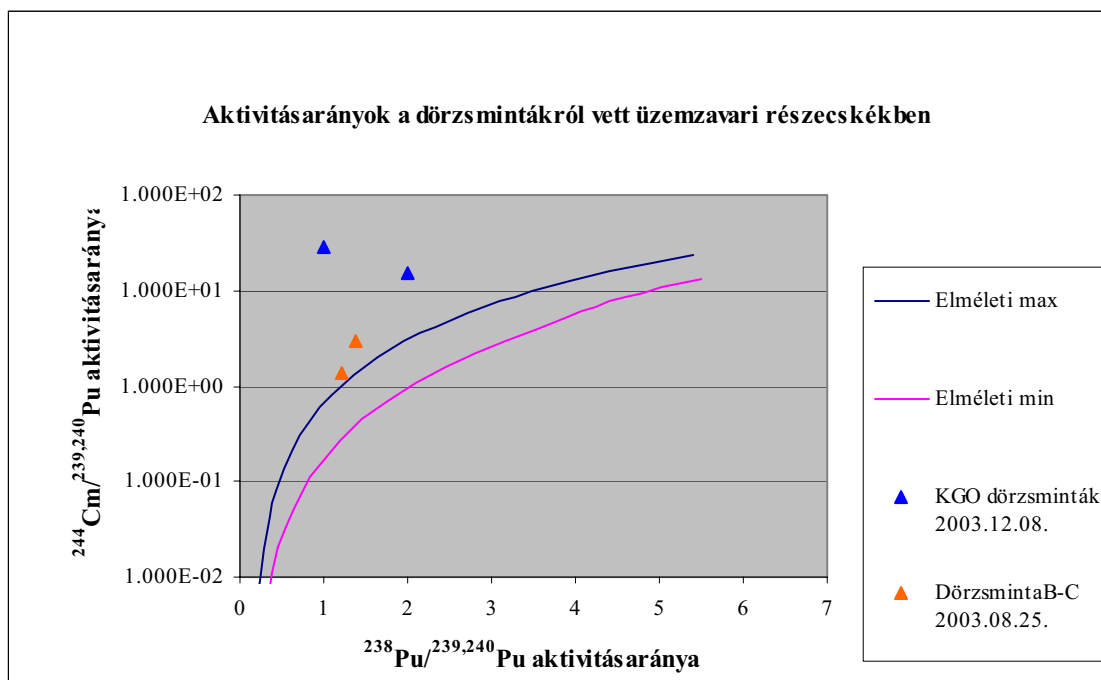
9.9. ábra Aktivitásarányok változása a fűtőelemek kiégetttségével a vízmintákban mérve

A 9.9. ábrán látható, hogy a vízmintákban mérhető aktivitásarányok jóval kisebb szórást mutatnak, mint a részecskékben mérhető arányok. A vízmintákban mérhető $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarány 0,85-1,67 közötti érték volt, ami 15 GWnap/tU-22 GWnap/tU közötti kiégettést jelent. Az oldatmintákból számítható átlagos $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányra 1,14 adódott, ami kb.17 GWnap/tU kiégettésnek felel meg. Az oldatok által meghatározható kiégettés tehát nem jellemzi az egyedi, kikerült egyedi részecskék kiégettését, hanem egy átlagos kiégettés adható meg az oldat mérése alapján. A vízmintákból becsülhető kiégettés közel van az üzemzavar során megsérült 30 köteg fűtőelem átlagos kiégettéséhez, ami a PA Rt RFO számításai szerint 2003. április 1-én (kampány végén) közelítőleg 16,7 GWnap/tU volt.

Az oldatminták esetében is a Cm izotópok aktivitása nagy, ami nagyobb $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányt okoz az elméletinél, ami a Cm oldódási tulajdonságaival magyarázható. A Pu izotópokhoz képest a Cm izotópok jobban oldódnak, ez okozhatja az oldat irreálisan nagy Cm aktivitását. A szemcsék esetében az anomália lehet a Cm preferált szorpciójának (a részecskék felületén) is a következménye. A részecskék kiválasztásának módja nem garantálja, hogy kizárólag egyedi fűtőelem-részecskéket különítünk el, a részecskék egy része lehet olyan korróziós- ill. fűtőelem-szemcsé is, melyek felületére transzurán izotópok adszorbeálódtak a vízből. (A részecskék pontosabb elkülönítésére, a korróziós- és fűtőelem-szemcsék szétválogatására egy mikromanipulátoros rendszer segítségével nyílhatna mód, mellyel nemcsak szemcsehalmozok, hanem néhány mikrométeres egyedi részecskék is levehetőek lennének a szűrőmintákról.)

Bár az aktivitásarányok szórása nagy, megfigyelhető, hogy extrém nagy kiégettű részecskéket csak a kezdeti időszakban sikerült kimutatni. Amennyiben valóban a tabletták peremrétegéből származnak a magas kiégettű részecskék, úgy elképzelhető, hogy ez a réteg a több hónapos oldódási folyamat során a pasztillák felületéről elfogy (és esetleg a víztisztító rendszerrel távozik).

Az üzemzavart követően néhány esetben dörzsmintákból elkülönített forró részecskék vizsgálatára is volt lehetőségünk. Az alábbi ábrán a dörzsmintákból elkülönített forró részecskék aktivitásarányai láthatók. (A kevés számú részecske miatt, annak a részecskének (KGO1E jelű részecske) az adatait is ábrázoltam, melynél a ^{244}Cm aktivitására csak detektálási határt számíthattam.)



9.10 ábra Aktivítárányok változása a fűtőelemek kiégettségével a dörzsmintákról elkülönített részecskékben mérve

A dörzsmintákból elkülönített részecskék esetében is megfigyelhető a nagy Cm aktivitás. A részecskékben mérhető Cm aktivitása eltérő, ami kapcsolatban lehet a mintavétel helyével és időpontjával, habár ez nem állapítható meg egyértelműen, a kevés számú rendelkezésre álló minta miatt. A részecskék $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya 1,22-2,15 közé esik, ami kb. 20-26 GWnap/tU kiégésnek felel meg. A szűrőmintáról elkülönített részecskék is, tehát a sérült fűtőelemek átlagos kiégésénél (16,7 GWnap/tU) magasabb kiégéssel rendelkeztek. Ez összhangban van a vízmintákból elkülönített részecskék kiégés értékeivel, melyek még ennél is magasabbak voltak bizonyos esetekben. A mért aktivitásarányokat az alábbi táblázat tartalmazza, a relatív szórásokkal együtt.

Izotópok	KGO1E	KGO2F	Dörzs B	Dörzs C
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	1.86E+00	2.15E+00	1.22E+00	1.39E+00
Relatív szórása	3.17E-01	1.96E-01	2.20E-02	1.02E-01
$^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya	2,91E+01 *	1.51E+01	1.40E+00	3.01E+00
Relatív szórása		2.06E-01	2.43E-02	8.95E-02

9.12 táblázat 2003.12.08-i ill. 2003.08.25-i dörzsmintákról elkülönített részecskék aktivitásarányai

Összefoglalva, az üzemzavari részecskék alfa-spektrometriás elemzése alapján megállapítható, hogy a részecskék kiégései igen eltérőek, és sok esetben szignifikánsan magasabbak, mint az elméletileg számított ill. a vízmintákból meghatározott kiégés értékek. A különösen nagy kiégésű részecskékről feltehető, hogy a tabletták magas kiégésű peremrétegéből származnak. A részecskékben mért transzurán aktivitások sok esetben magasabbak voltak a normálüzemi primerkörü részecskékben mért aktivitásoknál. A részecskékben mért Cm aktivitása különösen nagy volt, aminek oka a Cm részecskékhez történő szorpciója lehet.

* Megjegyzés: A * -al jelölt esetekben az arányokat L_d érték felhasználásával kaptam.

10. Környezeti minták vizsgálata

10.1. Elemzett környezeti minták

Doktori munkám során nemcsak atomerőművi mintákban található forró részecskék elemzésével foglalkoztam, hanem a környezetünkben található forró részecskék jellemzéséhez is felhasználtuk a már korábban kidolgozott autoradiográfias ill. radioanalitikai módszereket. Kis számú minta birtokában volt csak lehetőségünk környezeti mintákban forró részecskéket keresni és vizsgálni, azonban még ilyen kis számú minta esetén is bemutatható, hogy az általunk kidolgozott elemzési módszerekkel lehetőség nyílt környezetünk radioaktív szennyeződése esetén környezeti mintákban kimutatni a forró részecskéket, elkülöníteni ill. jellemezni őket.

Az alábbi táblázat az azokan a részecskéknek a jellemzőit tartalmazza, melyeket környezeti mintákból különíttem el az autoradiográfias felvételek alapján

(AR: autoradiográfia, α -sp.(F): alfespektrometria (feldolgozással), α : összalfa mérés, γ : gammaspektrometria, γ (MF): gammaspektrometria (mintafelezéssel)

Vizsgált részecske jele	Eredete	Mintavétel ideje	Vizsgálati módszerek
RADHP1	Csernobili zónából (Csernobiltól 21km-re, északra levő Radin faluból) vett talajminta	Nem ismert	AR, α -sp.(F), γ (MF)
RADHP2			AR, α -sp.(F), γ (MF)
LEVA	BME által gyűjtött levegőszűrőből kivett részecske	1986. 04. 26-29. (átáramlott levegő: 626,6m ³)	AR, α -sp.(F), γ
LEVB			AR, α -sp.(F), γ
COLHP1	colombói monazit homok	2003. 08.	AR, α -sp.(F), γ (MF)
COLHP2			AR, α -sp.(F), γ (MF)

10.1. táblázat Környezeti mintákból elkülönített forró részecskék adatai

A csernobili talajmintáról feltételezhettem, hogy tartalmaz forró részecskéket, egyrészt a mintavétel helyéből adódóan, másrészt a korábbi orosz elemzések eredményeiből (lásd mellékletben található orosz eredményeket).

A relatíve nagy aktivitású levegőszűrő-mintákon azért kerestem részecskéket, mert a csernobili balesetet követően (1986 áprilisában) voltak elhelyezve Budapesten a BME kertjében. Feltételezhető volt, hogy a légköri robbantásokból származó szennyeződések mellett a csernobili eredetű szennyeződések is tartalmaz.

A colombói homok monazit homok, melynek a szakirodalom szerint magas a Th tartalma (Koch, 1967),(Vértes, 2003). (Feltételezhető volt, hogy az aktivitás a homokszemcsékhez kötött, tehát részecskeformában van jelen a mintában.)

10.2. Forró részecskék elkülönítése környezeti mintákból

A környezeti minták összaktivitása általános esetben sokkal kisebb, mint az atomerőművi mintáké. Még a szennyezett, sok esetben forró részecskéket tartalmazó mintáknál is problémát jelent a nagy mintamennyiség esetén a részecskék azonosítása. Szűrőminták esetében a minta aktívabb területei a primerköri ill. üzembizari szűrőmintákra kidolgozott autoradiográfias módszerrel jól elkülöníthetőek. Az olyan minták esetében is alkalmazható a minta előzetes feldolgozása/mérése nélkül az autoradiográfia, melyek az aktivitást szemcsékhez kötötten ugyan, de közel homogénen tartalmazzák. A részecskék a kidolgozott autoradiográfias módszerrel jól elkülöníthetők. Nagy mennyiségű talajminták esetében (melyek valamilyen nukleáris kibocsátás következtében szennyeződtek) a forró részecskéket elsőként gamma-spektrometriával próbáltam meg azonosítani. S csak a minta kisebb tömegű, aktívabb részéről készítettem autoradiográfias felvételt.

10.2.1. Forró részecskék elkülönítése minta-felezéses módszerrel környezeti mintákból

Minta-felezéses módszerrel, azonos tömegű minták gamma-spektrometriás mérésével különíttem el elsőként a nagyobb aktivitású területeket. Csernobil közeli (Radin és Kruki faluból vett) talajmintákból ill. colombói monazit homokból próbáltam meg mintafelezéssel nagyobb aktivitású mintarészeket elkülöníteni.

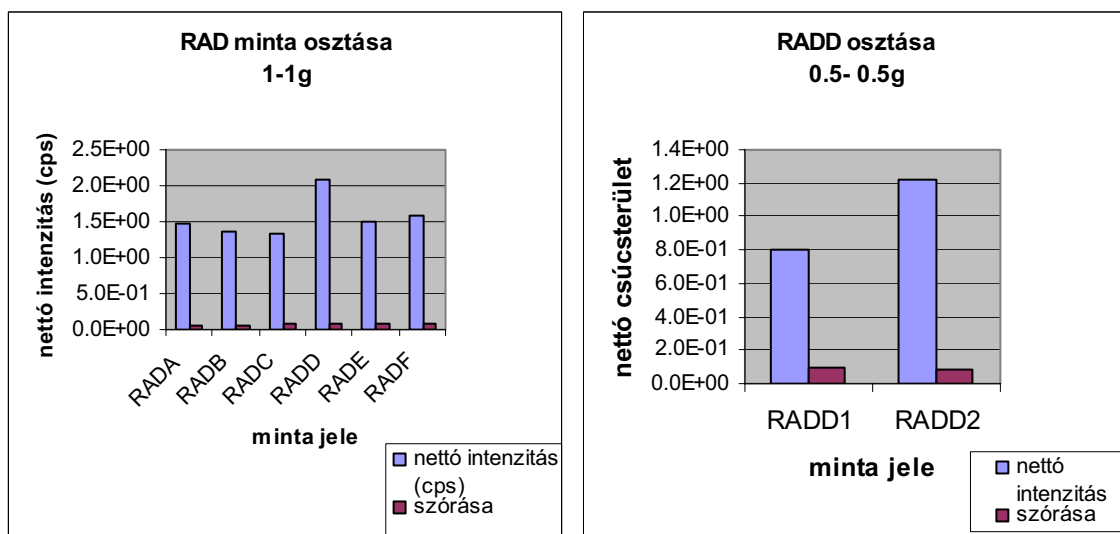
Mivel kevés környezeti minta állt rendelkezésemre, így Nemzetközi Atomenergia Ügynökségtől (NAÜ) származó referencia anyagokban is megpróbáltam forró részecskéket kimutatni, azonban ezek a mérések nem jártak sikerrel. Olyan környezeti mintákat vizsgáltam meg, melyek különféle nukleáris incidensek következtében

szennyeződtek, s a NAÜ-s összemérési referenciák szerint inhomogének voltak. (Sellafieldi homok (IAEA-135), valamint Csernobil közeli talajminta (IAEA-375) inhomogenitását vizsgáltam gamma-spektrometriával, minta-felezgetéssel.) Ezekből a mintákból autoradiográfiával se sikerült forró részecskéket elkülöníteni.

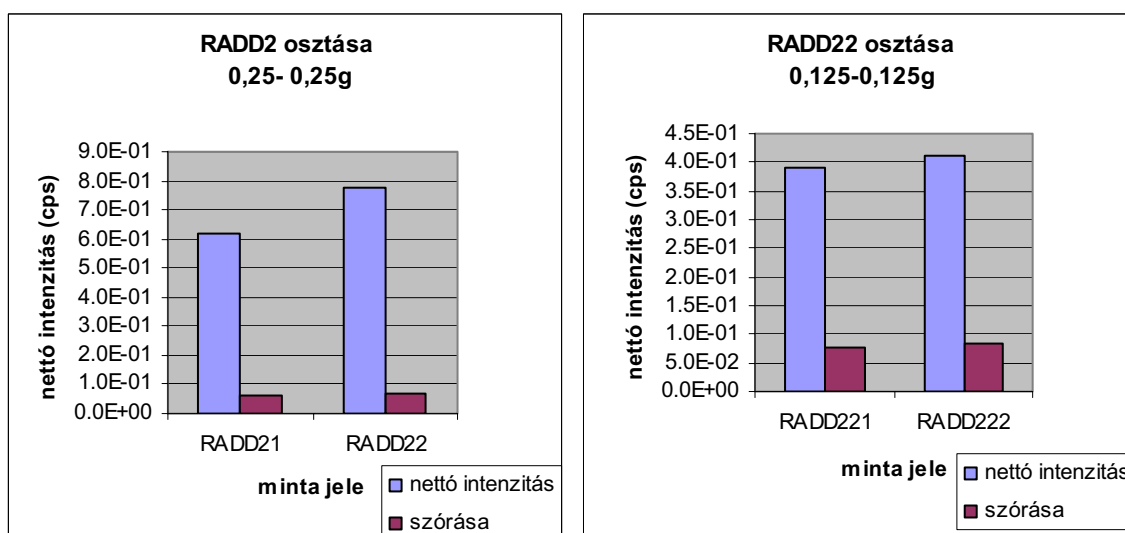
A Csernobil közeli talajminták felezgetése

Elsőként a Radinból származó, Csernobil közeli talajmintákból próbáltam meg forró részecskét tartalmazó kisebb tömegű mintákat elkülöníteni gamma-spektrometriás mérésekkel. Azonos geometriában, azonos tömegű, vékony rétegbe kiterített talajmintákat gamma-spektrometriával vizsgáltam. Az azonos tömegű minták esetében a ^{137}Cs -hoz tartozó nettó csúcsterület értékeit határoztam meg és az aktívabb mintákat tovább felezgetve, ismételtetem a mérést. A kiindulási minták tömege 1 g volt, az autoradiográfiához elkülönített minta tömege végül 0,125 g lett.

A 10.1. ábrák a mintafelezgetés során meghatározott ^{137}Cs nettó csúcsterületeit mutatják. A minták a minták aktivitásától függően, de egyforma mérési ideig voltak mérve, 10mm-re a detektortól, alutálcában. A gamma-spektrometriához ORTEC gyártmányú HPGe detektort használtam (POP-TOP detektort), Canberra Accuspec analízátorral.



10.1. a – b. ábra Radin faluból vett talajminta felezgetése során mért ^{137}Cs nettó csúcsterületek



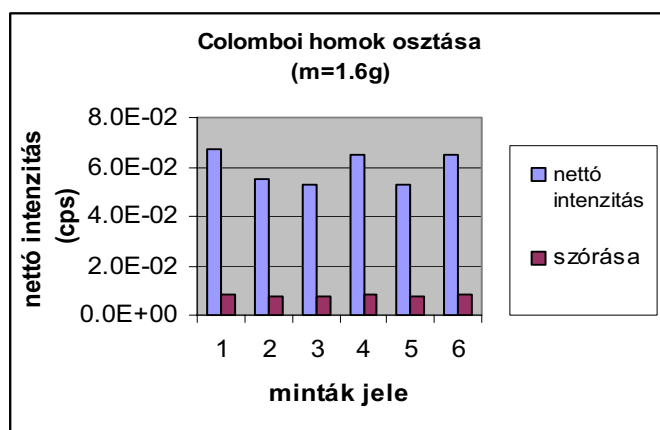
10.1. c – d. ábra Radin faluból vett talajminta felezgetése során mért ^{137}Cs nettó csúcsterületek

A minták kevésbé aktív részét is elfeleztem általában és megmértem, azonban, mivel ott nem tapasztaltam szignifikáns eltérést, az autoradiográfias felvételeket a RADD221 ill RADD22 jelű mintarészről készítettem végül. A minták további felezgetése során már nem volt szignifikáns különbség a nettó csúcsterületek között.

Egy másik Csernobil közeli (KR jelű, csernobili zónából, Kruki faluból származó) talajmintából is próbáltam mintafelezgetéssel elkülöníteni aktívabb részeket, azonban nem sikerült a szennyezésben a mintafelezgetéssel inhomogenitást kimutatnom. A mintából kivett részről készített autoradiográfias felvételen sem látszottak forró részecskék.

Colomboi homok felezgetése

A minta felezgetésével, gamma-spektrometriával (^{232}Th leányának, a ^{228}Ac gamma vonalának mérésével) próbáltam meg elsőként a colomboi monazit homokból is elkülöníteni a forró részecskéket, aktív homok szemcséket, azonban a minta bár részecskeformában tartalmazta az aktivitást, azonban homogénnek bizonyult. Az aktívabb, magasabb Th tartalmú szemcséket a mintából színük alapján lehetett a legkönnyebben elkülöníteni. Az 1,6 g-nyi tengeri homok ^{228}Ac vonalának nettó intenzitásait mutatja az alábbi diagram. (A mérési eredmények alapján, a diagramon szereplő 1-es jelű mintáról készítettem autoradiográfias felvételt, majd elkülönítettem a COLHP1 és COLHP2 jelű részecskéket.)



10.2. ábra A colomboi homok minta osztása során mért ^{228}Ac nettó csúcsterületek

10.2.2. Környezeti minták autoradiográfias vizsgálata

Az autoradiográfiát, hasonlóan a korábbi mérésekhez a környezeti minták esetében is Fortepan 100-as fekete-fehér film felhasználásával készítettem, majd a képeket digitalizálva a Photostyler programmal határoztam meg az aktívabb területek relatív feketedését. A környezeti minták esetében a filmeket általában néhány hétig exponáltam és felvételek a szokott módon hívtam elő és fixáltam (7.2. fejezet).

A környezeti minták esetében a minták típusától függően technikailag más-más módon valósítottam meg az autoradiográfiát. A Radinból származó talajminták valamint a colomboi monazit homok esetében a már gamma-spektrometriával kiválasztott néhány grammnyi, néhány tized grammnyi mintát síklapra feltett kétoldalú ragasztóra szórtam rá, kellően vékony réteget képezve így autoradiográfias felvétel elkészítéséhez. A talaj, homokrészecskéket ezekben az esetekben is lakkal rögzítettem a kétoldalú ragasztóhoz. A radini talajminta esetében két részecskét különítettem el, a RADHP1 és a RADHP2 jelűt (10.1 táblázat). A colomboi homokból és két szemcsét választottam ki, COLHP1 ill. COLHP2 jelű részecskéket vizsgáltam (10.1 táblázat).

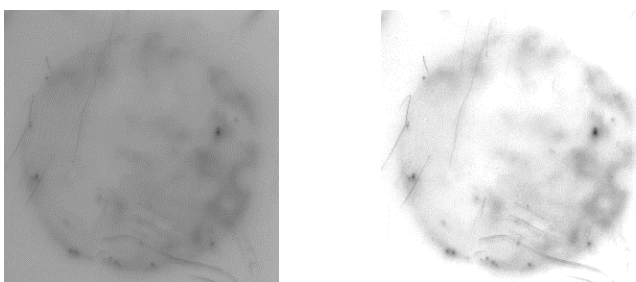
A BME 1986. áprilisi levegőszűrőit már korábban acetonnal kezelték. Nekem a néhány milliméter vastagságú, megkeményedett acetonnal oldott szűrőmintákról volt lehetőségem autoradiográfias felvételeket készíteni. A filmet ezen minták esetében közvetlenül a mintához szorítottam hozzá, de a képek felbontása a minták felületének egyenetlenségéből adódóan rosszabb volt, mint a primerkörü/üzemzavari ill. a környezeti talaj/homok minták esetében. (Egy szűrőminta esetében sikerült a mintán nagyobb aktivitású részeket találnom, LEVA és LEVB jelű forró részecskéket sikerült elkülönítenem, 10.1. táblázat.)

A környezeti mintákból későbbiekben elkülönített részecskék relatív (nettó) feketedéseit mutatja a 10.2. táblázat.

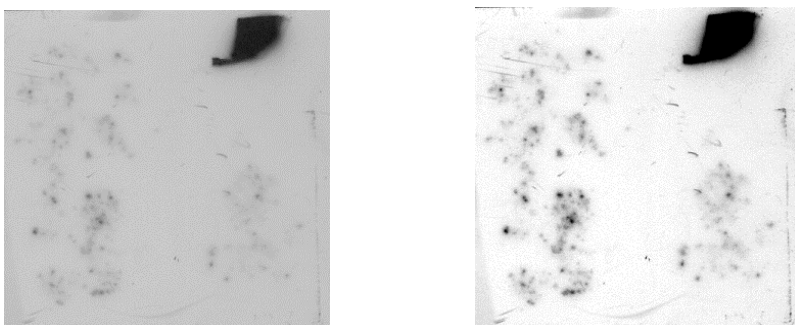
Forró részecskék jele	Relatív feketedés	Szórása	Exponálási idő	Relatív feketedés/exponálási idő (1/h)
RADHP1	85	7	46 nap	0,077
RADHP2	75	6		0,068
LEVA	64	10	47 nap	0,057
LEVB	80	10		0,071
COLHP1	127	6	46 nap	0,115
COLHP2	111	9		0,101

10.2. táblázat Környezeti mintákból származó forró részecskék relatív feketedései

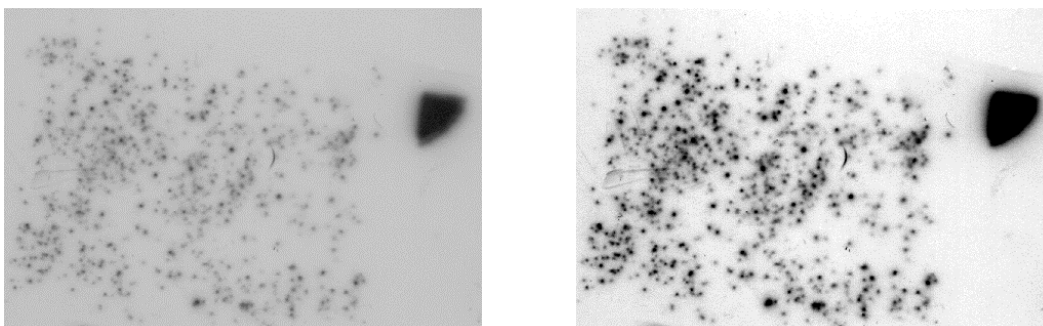
A 10.3., 10.4. és 10.5. ábrákon a környezeti mintákról készített autoradiográfiai képek láthatók.



10.3. ábra Az 1986-os BME levegőszűrő képe az LEVA ill. LEVB jelű részecskével (a kép szürkességének és kontrasztjának módosítása nélkül ill. módosításával).



10.4. ábra A Radin közeli talajminta autoradiográfiája részecskével (a kép szürkességének és kontrasztjának módosítása nélkül ill. módosításával), melyről a RADHP ill. RADHP jelű részecskét különítettem el*



10.5. ábra A colomboi homokról készült felvétel (a kép szürkességének és kontrasztjának módosítása nélkül ill. módosításával), amelyből a COLHP1 és a COLHP2 részecske lett elkülönítve.*

* A részecskék könnyebb azonosításához a felvételen egy primerkörü szűrődarab is látható, amely segítségével könnyebben meghatározható a részecskék helye.

A környezeti mintákban található részecskék autoradiográfias eredményeit összehasonlítva a normálüzemi szűrőmintákon ill. üzemzavari mintákon található részecskék eredményeivel, jól látható, hogy a környezeti minták esetében sokkal hosszabb exponálási időre volt szükség a jól értékelhető kép elkészítéséhez. A környezeti részecskék relatív feketedés/ exponálási idő hányados értékei 0,06-0,1 közé estek. A normálüzemi ill. üzemzavari minták esetében a relatív feketedés/exponálási idő hányadosok általában sokkal nagyobbak voltak. A normálüzemi minták esetében ez az érték 4,25-7,63 közé esett, míg az üzemzavari minták (takarás nélküli felvételeinél) esetében 1,07-5,54 között volt. Az üzemzavari minták esetében az alacsony relatív feketedés/exponálási idő értéket a filmek telítése is okozhatta a minták nagy aktivitása miatt.

Látható, hogy a csernobili baleset következtében szennyeződött mintákban található részecskék (LEVA, LEVB, RADHP1, RADHP2) esetében 2 nagyságrenddel alacsonyabbak a relatív feketedés/exponálási idő hányados értékei, mint a reaktoros normálüzemi ill. üzemzavari részecskék esetében. (Ezt a nagy különbséget okozhatja például az, hogy a csernobili eredetű részecskékben a transzurán izotópok, például a relatíve rövid felezési idejű Cm izotópok egy része már lebomlott.) A colombói homokból elkülönített részecskék esetében egy nagyságrenddel mértünk alacsonyabb értéket a normálüzemi és üzemzavari értékeknél.

A környezeti mintákról készített autoradiográfias felvételeknél is azonosíthatók forró részecskék, bár a levegőszűrő-minta esetében nehezebb a részecskék azonosítása. A colombói homokminta esetében a részecskék könnyen azonosíthatóak, a felvételeken látható feketedések egy-egy homokszemcséhez kötődnek.

* A részecskék könnyebb azonosításához a felvételen egy primerkörü szűrődarab is látható, amely segítségével könnyebben meghatározható a részecskék helye.

10.3. Környezeti minták radioanalitikai vizsgálata

A kidolgozott radioanalitikai módszerek nemcsak az atomerőművi minták elemzésére voltak alkalmasak.

Az autoradiográfiával azonosított, majd a környezeti mintákból elkülönített forró részecskék esetében is végeztem radionanalitikai vizsgálatokat. A mintákat elemeztem gamma-spektrometriásan és alfa-spektrometriásan egyaránt. A gamma-spektrometriás mérések sok esetben már a forró részecskék elülönítésében szerepet kaptak.

10.3.1. Gamma-spektrometria

A környezeti mintákból elkülönített forró részecskék és esetenként nagyobb térfogatú minták gamma-spektrometriás vizsgálatához ORTEC gyártmányú HPGe detektort használtam (POP-TOP detektort), Canberra Accuspec analizátorral ill. néhányszor HPGe well (GCW 2022, Canberra gyártmányú) detektorral végeztem el a méréseket. A mintákban található izotópok csúcsterületének meghatározása általában a SAMPO (Canberra) szoftver segítségével történt. A gammaspektrumok kiértékelésének részletes menetét a alábbi irodalmak tartalmazzák (Kerkápoly, 2001), (BME NTI, 2003). A környezeti mintákban található gammasugárzó nuklidok jellemzői a mellékletben található meg (M2. táblázat).

10.3.2. Alfa-spektrometria és radiokémiai elválasztási eljárás

A környezeti részecskékből a Pu, (Am/Cm), U elválasztása a normálüzemi és az üzemzavari részecskénél alkalmazott eljárással történt (a RADHP1, RADHP2, LEVA, LEVB ill. COLHP1 és COLHP2 mintáknál*), annyi változtatással, hogy a mintához az eljárás elején Mohr-sót tettünk, hogy a kitermelések, még a kis aktivitások ellenére is jobbak legyenek. Az elválasztási eljárás sémáját a 8.4.1 fejezet 8.8 ábrája mutatja.

A COLHP1 és COLHP2 jelű részecske esetében - melyeket a colomboi monazit homokból különíttem el - az U izotópok aktivitása mellett az alfasugárzó Th izotópok meghatározása volt a fő cél. A Th eluálását is mutatja a 8.8 ábra.

A colomboi monazit mintáknál összehasonlításképp nagyobb térfogatú mintákat is elemeztem (későbbiekben COLFEK és COLVEGY jelű minták. A minták nagyobb térfogata, valamint alacsony oldhatósága miatt a 8.8 ábrán látható kromatográfiás extrakciót többszöri kálium-fluoridos ömlesztéses feltárás előzte meg.

Az alfa-spektrometriás mérések körülményeit részletesen a 8.4 fejezet tartalmazza. A környezeti minták elemzésekor meghatározott alfasugárzó nuklidok jellemzőit a melléklet M1. és M3. táblázatai tartalmazzák.

10.3.3. Az alfa- és gamma-spektrometria mérési eredményei

A levegőszűrőről elkülönített részecskék radioanalitikai vizsgálatának eredményei

Az 1986-os BME levegőszűrő mintáról két (LEVA és LEVB jelű) forró részecskét különíttem el az autoradiográfiás felvétel alapján (10.3. ábra). Mivel a levegőszűrőn levő szennyeződés többek között a csernobili baleset eredménye lehet, így a mintákban levő Pu, Am/Cm ill. U aktivitását szerettem volna meghatározni. A mért alfaaktivitásokat ill. detektálási határokat a 10.3. a. táblázat tartalmazza.

* A részecskék részletes adatait a 10. táblázat tartalmazza.

Izotópok	LEVA	LEVB
²³⁸ Pu aktivitása (Bq)	L _d = 3,77E-04	L _d =8,00E-04
Szórása (Bq)	-	-
^{239,240} Pu aktivitása (Bq)	L _d =3,81E-04	L _d =9,00E-04
Szórása (Bq)	-	-
²⁴¹ Am aktivitása (Bq)	L _d =1,75E-03	3,2E-03
Szórása (Bq)	-	4E-04
²⁴⁴ Cm aktivitása (Bq)	L _d =8,6E-04	L _d =1,11E-03
Szórása (Bq)	-	-
²⁴² Cm aktivitása (Bq)	L _d =1,39E-04	L _d =1,8E-03
Szórása (Bq)	-	-
²³⁸ U aktivitása (Bq)	1,56E-03	L _d =2E-04
Szórása (Bq)	2,2E-04	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	4,23E-03	L _d =3E-03
Szórása (Bq)	2,8E-04	-
²³⁵ U aktivitása (Bq)	3,00E-04	L _d =2E-03
Szórása (Bq)	1,3E-04	-

10.3.a táblázat LEVA és LEVB jelű részecske mért alfaaktivitásai

Az alfa-spektrometriás eredmények szerint az egyik levegőszűrőből vett részecskében (LEVA) U volt jelen mérhető mennyiségben, azonban a gamma-spektrometriás mérések azt erősítik meg, hogy a részecskék okozta feketedés a filmekben valószínűleg a béta- (⁹⁰Sr például) és a gammasugárzó izotópok okozhatták. A levegőszűrőn talált részecskében mérhető ²³⁴U/²³⁸U arány arra utal, hogy a mintában természetes eredetű urán volt mérhető. A másik levegőszűrős részecskében (LEVB) ²⁴¹Am volt alfa-spektrometriával kimutatható.

A gamma-spektrometriás elemzésekkel a mintákból mesterséges szennyezőként sikeresen a ¹³⁷Cs izotóp volt kimutatható, ami feltehetően a csernobili baleset következtében kerülhetett a mintákba. A gammasugárzó izotópok közül lehetőség lett volna még esetlegesen a ¹³⁴Cs vagy ¹²⁹I izotópok kimutatására. (A gamma-spektrometriás mérések kiértékelése során a minták önabszorpcióját a ¹²⁹I izotóp gamma vonalára nem vettem figyelembe, tekintettel a részecskék nagyon kis térfogatára. Az önabszorpció korrekció lehetséges mértéke, valamint elhanyagolhatósága és indokoltsága bővebben az alábbi irodalomban található meg (Kerkápoly, 2001).

A 10.3.b. táblázatban a LEVA és LEVB részecskék gamma-spektrometriás elemzésének eredményei láthatók.

Izotópok	LEVA	LEVB
¹³⁷ Cs aktivitása (Bq)	1,15E-01	1,21E-01
Szórása (Bq)	2,9E-02	3,1E-02
¹³⁴ Cs aktivitása (Bq)	L _d =4,51E-03	L _d =6,93E-03
Szórása (Bq)	-	-
¹²⁹ I aktivitása (Bq)	L _d =5,02E-02	L _d =1,42E-02
Szórása (Bq)	-	-
²⁴¹ Am (Bq)	L _d =2,60E-03	L _d =3,14 E-02
Szórása (Bq)	-	-

10.3.b táblázat LEVA és LEVB jelű részecske mért gammaaktivitásai

A teljes levegőszűrő mintában található ¹³⁷Cs aktivitását 1,69 Bq (+/-0,08 Bq/minta) volt, ennek kb. 7-7%-a volt mérhető a két részecskében (LEVA és LEVB), míg a részecskékkel elkülönített szűrődarabok területei 1-1%-ai voltak a teljes szűrő területének. Az autoradiográfias képek alapján is megállapítható, hogy a részecskék

relatív (nettó) feketedése a szűrőhöz képest nem kiugróan magas, amit a gamma-spektrometriás mérések is alátámasztottak. A két vizsgált részecskének (ami ugyanarról a szűrőről lett elkülönítve) a ^{137}Cs aktivitása közel azonos volt, azonban a balesetet követő 1986. május. 8-10. időszakban, más időpontban kihelyezett levegőszűrők aktivitásai igen eltérőek voltak. Egy másik ebben az időszakban, ugyanoda kihelyezett levegőszűrő ^{137}Cs aktivitása például 6,26 Bq (+/-0,28 Bq)-nek adódott 2004-ben (Kerkápoly, 2001).

Figyelembe véve az alfa-spektrometriás mérések eredményeit, feltételezhető, hogy az általam elkülönített LEVA és LEVB részecskék nem egyedi fűtőelemdarabok. Elképzelhető, hogy az illékony Cs porszemek felületére adszorbeálódott a balesetet követően, s a levegőszűrőkről kicsit magasabb Cs tartalmú szemeséket különítettem el.

A csernobili talajmintából elkülönített részecskék radioanalitikai vizsgálatának eredményei

A csernobili baleset következtében szennyeződött talajmintákból elkülönített forró részecskékben (RADHP1 és RADHP2) is a Pu, Am/Cm ill. U aktivitását határoztam meg a radiokémiai feltárást követően.

Az alábbi táblázatokban a csernobil közeli (Radin faluból vett) talajmintákból elkülönített forró részecskék alfa- és gamma-spektrometriás eredményei találhatóak.

Izotópok	RADHP1	RADHP2
^{238}Pu aktivitása (Bq)	4,0E-04	4,00E-03
Szórása (Bq)	2,6E-05	4,7E-04
$^{239,240}\text{Pu}$ aktivitása (Bq)	1,50E-03	1,70E-03
Szórása (Bq)	4,7E-04	4,2E-04
^{241}Am aktivitása (Bq)	$L_d=7,57E-03$	3,83E-02
Szórása (Bq)	-	1,5E-03
^{244}Cm aktivitása (Bq)	$L_d=6,4E-04$	3,74E-03
Szórása (Bq)	-	6,0E-04
^{242}Cm aktivitása (Bq)	$L_d=1,95E-02$	$L_d=1,73E-03$
Szórása (Bq)	-	-
^{238}U aktivitása (Bq)	9,7E-04	1,85E-03
Szórása (Bq)	1,6E-04	1,7E-04
^{234}U aktivitása (Bq)	7,64E-03	5,67E-03
Szórása (Bq)	3,1E-04	3,0E-04
^{235}U aktivitása (Bq)	5,6E-04	3,33E-04
Szórása (Bq)	1,19E-04	9,8E-05

Izotópok	RADHP1	RADHP2
^{137}Cs aktivitása (Bq)	1,19E-02	7,43E-02
Szórása (Bq)	2,9E-03	1,88E-02
^{134}Cs aktivitása (Bq)	8,17E-04	5,87E-04
Szórása (Bq)	2,04E-04	-
^{129}I aktivitása (Bq)	$L_d=4,07E-04$	$L_d=2,07E-04$
Szórása (Bq)	-	-
^{241}Am aktivitása (Bq)	$L_d=2,62E-04$	$L_d=5,24E-04$
Szórása (Bq)	-	-

10.4.a. táblázat(baloldali) RADHP és RADHP2 jelű részecskék mért alfaaktivitásai

10.4.b. táblázat (jobboldali)RADHP és RADHP2 jelű részecskék mért gammaaktivitásai

A RADHP1 ill. a RADHP2 jelű forró részecske esetében kimérhető volt a ^{137}Cs aktivitása ill. az egyik minta esetében a ^{134}Cs detektálása is sikeres volt. A Pu ill. az U izotópok, mindkét mintában meghatározható mennyiségben voltak jelen. Tekintettel arra, hogy a mintákban ugyanazon elemek több izotópját is sikeresen detektáltuk, lehetőség nyílt arra, hogy a mintákban levő izotóparányokat összehasonlítsam a csernobili szennyezés következtében kikerült aktivitásarányokkal. A $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitás arányából ill. a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitás arányok összehasonlításával vizsgálhatjuk a minták szennyezettségének eredetét, mivel az azonos elemek különböző izotópjai is megegyező viselkedésűek, a kikerülés, a környezetben való terjedéskor nem válnak szét. (A szakirodalomban sokszor $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ arányát is meg szokták adni, de ezek mérésével, a szennyezettség eredetével kapcsolatos információ nem nyerhető, mivel a Sr és a Cs kémiai viselkedése eltérő, (Kerkápoly, 2001)).

A RADHP1 ill. RADHP2 mintákban mérhető aktivitásarányokat az alábbi táblázat tartalmazza.

Izotópok	RADHP1	RADHP2
²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu	2.67E-01	2.35E+00
aktivitáсарány		
Relatív szórása	3.20E-01	2.74E-01
¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs	6.87E-02	-
aktivitáсарány		
Relatív szórása	6.39E-02	-

10.5. táblázat A RADHP1 és RADHP2 jelű részecskékben mért aktivitáсарányok

A csernobili kihullásból származó ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs aktivitáсарány az NAÜ által közétett inventár adatok alapján átlagosan $1,6 \cdot 10^{-3}$ korrigálva a bomlással 2004-re (a környezeti minták elemzésének időpontjára), míg a ²³⁸Pu/^{239,240}Pu aktivitáсарány 0,43, 2004-re korrigálva a bomlással (a környezeti minták elemzésének időpontjára). (IAEA, 1990), (Kerkápoly, 2001)

A mintákban mért aktivitáсарányokat összehasonlítva a fenti NAÜ által közétett adatokkal látható, hogy sok esetben igen eltérőek. A két mintában mért Pu aktivitáсарányok egy nagyságrenddel különböznek egymástól is. Ezek az eltérések ugyanazt mutatják, mint a korábbi nem környezeti forró részecske elemzések, miszerint a részecskékben mérhető arányok, aktivitáсерtékek különbözöek, a részecskék egyedi tulajdonságait ill. kibocsátó forrás (a károsodott üzemanyagpálcák) tulajdonságait tükrözik.

Összehasonlításképpen nagyobb térfogatú mintát is megmértünk a talajmintából gamma-detektoron, (5cm³ térfogatú mintát, lyukgeometriában). A mintában ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs aktivitáсерány $1,13 \cdot 10^{-3}$ volt, (szórása 4%). Látható, hogy a nagyobb térfogatú talajmintára kapott ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs aktivitáсерány közel esik a csernobili kihullásból várható arányhoz (az $1,6 \cdot 10^{-3}$ -hoz), ami szintén arra utal, hogy a részecskékben mérhető aktivitáсерányok eltérhetnek a mintában mérhető átlagos arányoktól. A talajmintából vett nagyobb mennyiségű minta elemzésével (0,335 g) a ²³⁸Pu/^{239,240}Pu aktivitáсерányára 0,46 adódott (11,4% szórással), ami szintén közel van az IAEA által megadott 0,43-hoz.

Figyelemreméltó a két részecskében mérhető ²³⁴U/²³⁸U aktivitáсерány is. A RADHP1-ben mért 7,88-as aktivitáсерány egyedi fűtőelem-fragmentum esetében nagyobb, mint 3,6%-os dúsítású fűtőelemrészecskének felelne meg, míg a RADHP2-ben mért 3,06-os aktivitáсерány 2%-os dúsítású fűtőelemnek felelne meg. A részecskékben talált, a ²³⁸U-hoz képest relatív alacsony Pu izotóp aktivitások azonban arra utalnak, hogy szemcsék nem egyedi fűtőelem-fragmentumok, hanem a talajban található ²³⁸U is kimérhető benne. A ²³⁴U/²³⁸U aktivitáсерány sokszor a természetes vizek, kőzetek esetében is nagyobb egynél, azonban a környezeti anomáliák ennél kisebb mértékűek. (A ²³⁴U/²³⁸U aránya a kőzetekben általában 0,89-2,19 között változik (Ivanovich, 1982).) A fűtőelemekben mérhető ^{239,240}Pu/²³⁸U aktivitáсерóktól eltérőek lehetnek a környezetbe kikerült részecskékben mérhető arányok amiatt is, hogy az U és Pu izotópok eltérő kémiai viselkedésük folytán a környezetben való terjedésük során szétválhatnak.

A colomboi monazit homokból elkülönített részecskék radioanalitikai vizsgálatának eredményei

A colomboi monazit homokból az autoradiográfias felvételek alapján elkülönített COLHP1 ill. COLHP2 jelű részecskét elemeztem gamma- ill. alfa-spektrometriával valamint, mivel ezekben sem az alfa-, sem a gamma-spektrometriás mérésekkel nem tudtam kimutatni a Th és U izotópokat, nagyobb mennyiségű minták elemzésére is sor került. A nagyobb mennyiségű minták elemzésekor néhány szemcsét különítettem el színük alapján, mivel a szakirodalom szerint a tórium-dioxid fehér, az urán-dioxid barna színű. A COLFEK (0,0229 g) ill. COLVEGY(0,02572 g) jelű minták fekete ill. vegyes színű szemcséket tartalmazó monazit homokminták. (A nagyon világos szemcsékben a gamma-spektrometriás mérésekkel nem sikerült sem a ²²⁸Th, sem a ²³⁸U leányelemeit kimutatnunk, nagyobb térfogatú mintából sem, ezért elemeztünk fekete ill. vegyes szemcséket.)

Az alábbi táblázatok a részecskék ill. a nagyobb mennyiségű homokszemcsék alfa- ill. gamma-spektrometriás mérési eredményeit mutatják.

A COLFEK ill. COLVEGY alfa-spektrometriás mérési eredményei is azt mutatják, hogy vegyes szemcséket tartalmazó minta Th tartalma magasabb. Meglepő a minták magas U tartalma, mivel a szakirodalomban a monazit homokot általában magas Th (ill. Ce) tartalmú kőzetként szokták csak emlegetni (Koch, 1967). A Th és U aktivitása más kőzetekben és talajokban általában 10-100 Bq/kg, itt egy nagyságrenddel nagyobb értékeket mértem.

Izotópok	COLHP1	COLHP2
²²⁸ Ac aktivitása (Bq)	$L_d=5,70E-02$	$L_d=8,14E-01$
Szórása (Bq)	-	-
²¹⁴ Bi aktivitása (Bq)	$L_d=2,22E-03$	$L_d=6,35E-03$
Szórása (Bq)	-	-

10.6.a. ábra (baloldali) COLHP1 és COLHP2 jelű részecskék gammaaktivitásai

10.7.a. (jobboldali) COLFEK és COLVEGY jelű minták gammaaktivitásai

Izotópok	COLFEK	COLVEGY
²²⁸ Ac aktivitása (Bq/kg)	38	876
Szórása (Bq/kg)	10	230
²¹⁴ Bi aktivitása (Bq/kg)	$L_d=95$	$L_d=150$
Szórása (Bq/kg)	-	-

Izotópok	COLHP1	COLHP2
²³⁰ Th aktivitása (Bq)	$L_d=6,7E-04$	$L_d=1,20E-03$
Szórása (Bq)	-	-
²³² Th aktivitása (Bq)	$L_d=3,07E-04$	$L_d=8,01E-4$
Szórása (Bq)	-	-
²³⁸ U aktivitása (Bq)	$L_d=1,24E-04$	$L_d=9,3E-04$
Szórása (Bq)	-	-
²³⁴ U aktivitása (Bq)	$L_d=1,83E-04$	$L_d=5,69E-04$
Szórása (Bq)	-	-
²³⁵ U aktivitása (Bq)	$L_d=2,05E-04$	$L_d=1,56E-04$
Szórása (Bq)	-	-

Izotópok	COLFEK	COLVEGY
²³⁰ Th aktivitása (Bq/kg)	460	451
Szórása (Bq)	200	86
²³² Th aktivitása (Bq/kg)	141	2242
Szórása (Bq/kg)	10	322
²³⁸ U aktivitása (Bq/kg)	848	1691
Szórása (Bq/kg)	81	3
²³⁴ U aktivitása (Bq/kg)	900	1694
Szórása (Bq/kg)	86	27
²³⁵ U aktivitása (Bq/kg)	$L_d=96$	76
Szórása (Bq/kg)	-	4

10.6.b. ábra (baloldali) COLHP1 és COLHP2 jelű részecskék alfaaktivitásai

10.7.b. ábra (jobboldali) COLFEK és COLVEGY jelű minták alfaaktivitásai

A ²²⁸Ac és a ²³²Th, valamint a ²¹⁴Bi és a ²³⁸U feltételezhetően egyensúlyban van az igen nehezen oldható monazit homokban, a gamma-spektrometriás és az alfa-spektrometriás mérések eredményei közti eltérést a gamma mérések határfok kalibrációs problémája okozza. (Ennek ellenőrzésére nagyobb mennyiségű (néhány grammnyi) különféle színű szemcséket vegyesen tartalmazó minta gamma-spektrometriás vizsgálatát végeztem el, olyan mérési geometriában, ahol ismert a pontos határfok. A mintában a ²²⁸Ac aktivitását 1493+/- 268 Bq/kg-nak, a ²¹⁴Bi aktivitását 1581+/-190 Bq/kg-nak mértem. A mért értékek a várakozásnak megfelelően a fekete és a vegyes szemcsék alfaaktivitásai közé esnek, tehát valószínűleg az egyedi szemcsékben a ²²⁸Ac/ ²³²Th, valamint a ²¹⁴Bi/²³⁸U egyensúlyban van.)

IV. Összefoglalás

A PhD munkám során olyan összetett módszert dolgoztam ki, mellyel atomerőművi ill. környezeti mintákban található forró részecskék tulajdonságai ismerhetők meg minél széleskörűbben.

Munkám során egyedi részecskéket különítettem el a paksi 3-as blokk primervizéből, majd ezek összetett vizsgálatával, a zónában esetlegesen jelenlevő hibás fűtőelemek tulajdonságaira következtettem a vizsgálati eredményekből.

A kidolgozott módszereket sikeresen alkalmaztam a 2003-as paksi üzemzavar következtében szennyeződött mintákban található forró részecskék vizsgálatára. Tanulmányoztam a részecskék eloszlásának homogenitását, az oldatok és a szűrők aktivitásának időbeli változását, valamint az egyedi részecskék kiégésének meghatározásával következtetéseket vontam le a részecskék oldódására vonatkozóan.

Bemutattam, hogy az atomerőművi minták elemzésére alkalmas módszerekkel relatíve kisaktivitású, környezetben található forró részecskék is vizsgálhatók, és értékes új információk szerezhetők be még ma is a csernobili atomerőmű-baleset következtében kikerült forró részecskékről éppúgy, mint a természetben néhány helyen jelenlevő magas természetes eredetű radioaktivitást tartalmazó kőzetekről (monazit homokról).

Egyszerű, gazdaságos, de mégis elegendően érzékeny film autoradiográfias módszert dolgoztam ki a részecskék helyének meghatározására, valamint elkülönítésére a további mikro- és radioanalitikai vizsgálatokhoz.

Több, kereskedelembe kapható fényképezési ill. röntgenfilmmel végeztem kalibráló méréseket ill. neutronaktivációs analízissel vizsgáltam a filmek Ag és Br tartalmát, hogy kiválasszam a primerkörü részecskék vizsgálatára alkalmasabb filmet. Az elemzések eredményeként, a magyar gyártmányú fekete-fehér FORTEPAN 100-as fényképezési filmet választottam ki az autoradiográfias módszerhez. A kalibráló mérések során megmutattam, hogy a filmmel jó felbontású, reprodukálható felvételek készíthetők, primerkörü minták esetében a film érzékenységből kifolyólag néhány óra (napos) exponálási idővel. Vizsgálataim szerint a film elsősorban az alfa- és a béta-sugárzásra érzékeny, így alkalmas arra, hogy a sík primerkörü szűrőkön található alfa-, béta- és gamma-sugárzó izotópokat vegyesen tartalmazó részecskéket kimutassa. A felvételek síkágys lapolvasóval történő digitalizálása után a felvételek számszerű kiértékelése egy képfeldolgozó program segítségével történt. A program segítségével a felvételeken látható részecskék, szűrők ún. relatív feketedését határoztam meg, a minták relatív feketedését a filmek üres (blank) részének feketedésével korrigálva adtam meg. Vizsgáltam a film relatív feketedését az exponálási idő, az alfa- ill. a bétaaktivitás függvényében. A filmek érzékenységét a relatív feketedés és exponálás (az exponálási idő és az aktivitás szorzata) hányadosával jellemeztem. Az alfaaktivitás ismeretében lehetővé vált a minimálisan szükséges exponálási idő becslése is. (Egy jó minőségű autoradiográfias felvételhez (relatív feketedés a minta helyén ~20-30) az E/B hányadosnak 15000-20000 1/Bqperc közé kell esnie.)

Vizsgáltam a részecskesűrűségét, a normálüzemi vízminták ill. az üzemzavari vízminták esetében a szűrők digitalizált autoradiográfias felvételei alapján. A szűrőmintákon levő részecskék számának becslésére MATLAB nyelven írt programot készítettem. Az elkészített MATLAB program a beolvasott autoradiográfias képet fekete/fehér képpé konvertálja át úgy, hogy bizonyos feketedés érték feletti és bizonyos méret feletti részecskéket hagy csak meg a képből. Ezzel az algoritmussal lehetővé válik a részecskék elkülönítése, összeszámlálása és méret szerinti rendezése. Az autoradiográfias képek elemzése megmutatták, hogy az üzemzavari minták esetében a részecskék sűrűsége 3 nagyságrenddel nagyobb, mint a normálüzemi minták esetében. Vizsgáltam a részecskék okozta feketedések méretének, mennyiségének változását az időben, mely normálüzemi minták esetében sokszor magyarázható volt a fűtőelem-meghibásodásokkal. Az üzemzavari minták esetében az időbeli változásokat a részecskék oldódási folyamatai befolyásolhatják.

Bemutattam, hogy a kidolgozott autoradiográfias technika alkalmas a környezeti mintákban jelenlevő forró részecskék kimutatására is.

A KFKI AEKI-vel való együttműködés révén lehetőség nyílt a részecskeshalmazok pásztázó elektronmikroszkóppal történő elemzésére, a részecskék méretének, morfológiájának tanulmányozására, valamint elemi összetételének (a korróziós termékek mennyiségének) meghatározására.

A roncsolásmentes vizsgálatokat a részecskék radioanalitikai elemzése követte. Módszert dolgoztam ki ill. adaptáltam egyedi részecskék alfa-spektrometriás vizsgálatára, mellyel a radiokémiai elválasztási eljárást követően a részecskékben található Pu, Am, Cm és U izotópok ill. esetenként a Th izotópok (a monazit homokminta esetében) aktivitását lehetett meghatározni. Az alfa-spektrometriás eredményeknek döntő szerepe jutott a részecskék jellemzésében, mivel a transzurán izotópok aktivitásarányai szoros kapcsolatban vannak a fűtőelemek kiégésével.

A radiokémiai elemzéseket követően összehasonlítottam a primerkörü ill. az üzemzavari részecskék aktivitását ill. a részecskefrakció és az oldott hányad aktivitásának arányát. A részecskék aktivitásai igen eltérőek

voltak, mind a normálüzemi primerköri, mind az üzemzavarai részecskék esetében. A Cm izotópok aktivitása a primerköri részecskékéhez képest szokatlanul magas volt, ami feltételezhetően a Cm részecskék kiemelkedő abszorpciójával magyarázható. (A normálüzemi mintákból elkülönített részecskék esetén a ^{244}Cm mért aktivitása $6,2 \cdot 10^{-4}$ - $7,8 \cdot 10^{-3}$ Bq közé esett, míg az üzemzavarai részecskékben mérhető aktivitás $9,89 \cdot 10^{-3}$ - $1,88 \cdot 10^{-1}$ Bq. A ^{242}Cm aktivitása a normálüzemi részecskékénél $3,2 \cdot 10^{-3}$ - $1,81 \cdot 10^{-1}$ Bq közötti érték volt, míg az üzemzavariaknál $8,83 \cdot 10^{-3}$ - $1,4$ Bq közti.) Míg normálüzemi minták esetében az aktivitás oldott hányada kb. 15-20% körüli, addig az üzemzavarai minták esetében az oldott hányad néhány minta esetében szokatlanul magas 80-90% körüli volt.

Az alfa-spektrometriás mérési eredmények (a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásaránya) alapján megbecsültem a primerköri ill. üzemzavarai részecskék kiégését. Megmutattam, hogy az oldatok aktivitásarányaiból becslhető kiégések mások, mint az egyedi részecskék kiégése. Az oldatok egy átlagos kiégést tükröznek, ami összhangban van az elméletileg várható kiégésekkel, míg a részecskék ettől különböző kiégéseket mutatnak. Az üzemzavarai részecskék kiégése az esetek nagy többségében jóval magasabb volt a sérült fűtőelemek átlagos kiégésénél. (A PA Rt RFO számításai szerint a sérült kazettákban lehetséges maximális kiégés az axiális eloszlás figyelembevételével 32 GWnap/tU lehet, míg a kazetták átlagos kiégése 16,7 GWnap/tU. A részecskékben mért $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok 5-55 GWnap/tU-os kiégésnek feleltek meg.) Az elméleti maximális értéknél magasabb kiégést okozhatja a tabletták egyenetlen kiégése is. A fűtőelemsérülés következtében kikerülő részecskék/fűtőelemtörmelékek nagy része a tabletták pereméről származik, ahol nagy a tabletták lokális kiégése

A környezeti mintákból elkülönített forró részecskék gamma- ill. alfa-spektrometriás vizsgálatával bemutattam, hogy a kidolgozott módszerekkel nemcsak atomerőművi minták vizsgálhatók, hanem érdekes információk szerezhetők be többek között a csernobili kibocsátásból származó forró részecskékről, valamint a természetben néhány helyen jelenlevő magas természetes eredetű radioaktivitást tartalmazó kőzetekről (monazit homokról) is.

A részecskék vizsgálatával kapcsolatosan még sok kapu nyitva áll, bővíthető az elemzési eljárások köre, az itt bemutatott módszerek továbbfejleszthetők ill. más típusú részecskék vizsgálatára is alkalmazhatók. A részecske elemzések eredményei a jövőben dozimetriai számítások bemenő adatai lehetnek, segítséget nyújtanak a fűtőelemek általános állapotának értékelésekor, valamint szerepet kapnak a paksi 2003. áprilisi üzemzavar értékelésében is. Egyes vizsgálati módszerek továbbfejlesztése révén lehetőség nyílik a zónában levő szerkezeti elemek korróziós folyamatainak vizsgálatára is.

A kidolgozott részecske azonosítási, elkülönítési módszerrel más mikroanalitikai vizsgálatok számára is alkalmas minták készíthetők pl.: lehetőség nyílik a részecskék szinkrotronnyalábos (μ -XANES) elemzésére, a részecskékben található elemek (Pu, U) oxidációs állapotának meghatározására. Néhány üzemzavarai minta elemzése már megmutatta a módszerek kombinált alkalmazhatóságát.

A kidolgozott autoradiográfiás részecske elkülönítési módszer a jövőben pontosabbá tehető egy mikro-manipulátoros részecske elkülönítő rendszer alkalmazásával. Ezzel gazdaságosabbá tehetőek az esetleges szinkrotronnyalábos vizsgálatok is.

Irodalomjegyzék

A.B.Akopova, N.V.Magradze, A.A.Moiseenko, T.S.Chalabian, N.V. Viktorova, E.K.Garger: Autoradiographic Investigation of Radionuclide Alpha-activity in Soil and Plant Samples from Chernobyl Zone, Nuclear tracks Radiation Measurements, Vol. 19. , pp. 733-739, (1991)

M.F.L`Annunziata: Haandbook of radioactivity analysis, Academic Press, (1998), pp. 647-655

Dr. Aszódi Attila, Légrádi Gábor, Yamaji Bogdán: Üzemanyagsérülés és jellemzői a paksi súlyos II. Nukleáris Technikai Szimpózium, Budapest (2003. december. 4-5.), CD-rom

M. Bakali, F. Fernández, T. BOuassoule, J. Castelo, A. Gonzalez: Hot particle dosimetry at nuclear power plants

I.Balásházy, I. Fehér, G.Szabadyé-Szende, M. Lőrinc, P. Zombori, L. Pogány: Examination of Hot Particles Collected in Budapest Following the Chernobyl Accident, Radiation Protection Dosimetry, 1988, pp. 263-267

N. Barthe, K. Chatti, P. Coulon, S. Maitrejean, B. Basse-Cathalinat: Recent technologic developments on high-resolution beta imaging system for quantitative autoradiography and double labeling application, Nucl. Instr. And Meth. In Phys.Res., A 527 (2004), pp. 41-45

D.R.Beamen and J.A.Isaci: Electron Beam Microanalysis, ASTM Special Technical Publication 506, 1972

M. Blaauw, Gamma-ray Catalogue for Instrumental Neutron Activation Analysis, Interfacultair Reactor Instituut van de Technische Universiteit, Delft, (1996)

BME NTI: Eljárások és utasítások a BME NTI Oktatórektor Nagylaboratórium Radiokémiai Laboratóriumának Minőségügyi Kézikönyvéhez, Budapest, (2003)

Bernd Jähne, Horst Haußecker, Peter Geißler (editors): Handbook of Computer Vision and Applications, ACADEMIC PRESS, 1999

Bondarenko P.L. Salmon, D.L. Henshaw, A.P.Fews, A.N.Ross: Alpha Particle Spectroscopy with TASTRAK (CR-39 Type) Plastic, and its Application to the Measurement of Hot Particles, Nucl.Instr. Methods in Physics Research, 1996, 582-587

K Bunzl: Probability for Detection Hot Particles In Environmental Samples by Sample Splitting , Analyst, July 1997, Vol.122(653-656)

E. Browne, R. B. Firestone: Table of Radioactive Isotopes (1996, Virginia S. Shirley Editor)

M.W.Charles: The hot particle problem, Radiation Protection Dosimetry, Vol.39No.1/3, (1991), pp.39-47

Y.Charon, P. Laniece, H. Tricoire: Radio-Imaging for Quantitative Autoradiography in Biology, Nuclear Medicine and Biology, Vol. 25, (1998) pp. 669-704

G. Choppin, J.O. Liljensen, J. Rydberg: Radiochemistry and Nuclear Chemistry, Butterworth-Heinemann, Oxford (1996)

M.H. Chun, N. Tak, S.K.Lee: Development of a Computer Code to estimate the Fuel Rod Failure Using Primary Coolant Activities of Operating PWRs , Ann. Nucl.Energy, CVol25, pp 753-763,1998

M.H. Chun, S.K. Lee, Y.S Kim, K.D.Kim, T.W.Hwang, M.C. Lee, M.J Song: Prediction of Fuel Failures by Linear Regression Method: Development of the CAAP Code, Proceedings of Int. Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, Utah, April 2000 (CD-rom)

A. Csordás Tóth, B. Szikora, J. Kürthy-Kmolósy, I. Tassy: Preparation and characterization of some particulate materials in the aluminium industry: Scanning Electron Microscopy, Vol. 5, No. 4. (1991) pp. 989-1000.

P.R. Danesi, A. Markowicz, E. Chinea-Cano, W. Burkart, B. Salbu, D. Donohue, F. Ruedenauer, M. Hedberg, S. Vogt, P. Zahradnik, A. Ciurapinski: Depleted uranium particles in selected Kosovo samples

L.Devell: Nuclide Composition of Chernobyl Hot Particles, Bergbau- und Industriemuseum Theuern, Vol. 16., (1988), pp. 23-34

Mats Eriksson : On Weapons Plutonium in the Arctic Environment (Thule, Greenland), (April, 2002) Riso National Laboratory, Roskilde, Denmark (Riso-R-1321(EN))

M. Eriksson (2), K.Ljungén, C. Hindorf: Plutonium separation techniques using real-time digital imaging systems, Nuclear Instruments and methods in Physics Research A 488(2002), 375-380

M. Eriksson, E. Holm, P. Roos and H. Dahlgård : Distribution and flux of ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{137}Cs and ^{210}Pb to high arctic lakes in the Thule district (Greenland), Journal of Environmental Radioactivity, Volume 75, Issue 3, (2004), pp. 285-299

R.L.Fleisher, P.B. Price, R.M. Walker: Alpha autoradiography. Nuclear tracks in Soils, Principles and Applications University of California, Ltd., London, (1975), pp. 512-513

Garland J.A., Nicholson K.W.: A review of methods for sampling airborne particles and associated radioactivity, Journal of Aerosol Science, (1991), pp. 479-499

Grafton D.Chase, S. Rituper, J.W. Sulcoski: Experiments in Nuclear Science (Teacher's Guide)- Autoradiography, (1971), pp. 46-50

R.E.Van Grieken, A.A.Markowicz: Handbook of X-Ray Spectrometry- Methods and Techniques, Radioisotopic X-ray Analysis, Marcel Dekker, New York (1993), pp.359-381

F. Groeschel, G. Bart, R. Montgomery, S.K. Yagnik: Failure Root Cause of a PCI Suspect Liner Fuel Rod, Proceedings of IAEA TCM on Fuel Failure in Water Reactors: Causes and Mitigation June 2002, Bratislava (CD-rom)

A.V. Gromov, V.E. Kopchenov, A.S. Krivokhatskiz, V.A.Nikolaev, S.V. Stolzarov, V.V.Tokarevskiy, V.P.Pautov: Application of Track detectors for Alpha-Activity Measurement of Soil, Water and Surface of Objects in the 30-km Zone of the Chernobyl NPP, Nucl.Tracks Radiat.Meas., Vol 21, No3,(1993),377-382

E. Gross: Kolloquium über radioaktive Partikel, Sonderausschuss Radioaktivität, (1959)

E. Gross (2): Entstehung, Zusammensetzung und Struktur von heißen Teilchen, Sonderausschuss radioaktivität, (1959)

Grüter, R. Blaschke: Alphaaktive heiße Fallout-Teilchen aus Staubproben von 1961/62, Staub Reinhaltung der Luft 45(7,8), 325-328, (1985)

Hózer Zoltán, Kerkápoly Anikó, Perezné Feró Erzsébet: Fűtőelem-sérülések, OAH/NBI-ABA-56-03, (2004)

Hózer Zoltán: A fűtőelemzivárgás-modelljezése, PhD dolgozat/KFKI-AEKI, (2003)

Hózer Zoltán (2), Györi Csaba, Windberg Péter, Matus Lajos: Mi történhetett a paksi fűtőelemekkel az üzemzavar során?- II. Nukleáris Technikai Szimpózium, Budapest (2003. december. 4-5.), CD-rom

Z. Hózer, N. Vajda: Prediction of Iodine Activity Peak During Refuelling, 5th International Seminar on Primary and Secondary Side Water Chemistry of Nuclear Power Plants, Eger 17-20 September 2001

IAEA: The International Chernobyl Project - IAEA Technical Report, Part D Environmental Contamination (1990)

IAEA: Design and Performance of WWER Fuel, IAEA Technical Reports Series No. 379, 1996

IAEA: Review of Fuel Failures in Water Cooled Reactors, IAEA Technical Reports Series No. 388, 1998

IAEA Coordinated Research Programme- Radiochemical and Physical Characterization of Radioactive Particles in the Environment (Report), (18-22 October, 2004), Trieste, Italy

IAEA: Summary, Proceedings of IAEA TCM on Fuel Failure in Water Reactors: Causes and Mitigation June 2002, Bratislava (CD-rom)

M. Ivanovich, R.S. Harmon (editors): Uranium Series Disequilibrium Applications to Environmental Problems, Clarendon Press, Oxford, (1982), pp. 253-259

V. A. Kasparov, Yuri A. Ivanov, Sergey I. Zvarisch, Valentin P. Protsak, Yuri V. Khomutinin, Alexander D. Kurepin, Edvard M. Pazukhin: Formation of hot particles during the Chernobyl Nuclear Power Plant accident, Nuclear Technology (May 1996), pp.246-253

Kerkápoly A.: A csernobili atomerőmű-balesettel kapcsolatos környezeti minták összetett radioanalitikai vizsgálata, BME NTI, (2001), Diplomamunka

A. Kerkápoly, N. Vajda, A. Csordás, Z. Hózer, T. Pintér: Fuel failures at Paks NPP, Proceedings of IAEA Technical Meeting on Fuel failure in water reactors: Causes and mitigation, Slovakia, (17-21 June 2002), pp. 284-292

A. Kerkápoly, Zs. Molnár, D. Tar, N. Vajda, A. Pintér Csordás, T. Pintér, É. Komlósi: Analysis of Hot Particles Originating from the Primary Circuit of NPP Paks, 6th International Seminar on Primary and Secondary Water Chemistry of Nuclear Power Plants, Budapest, (16-19 May, 2005)

V. W. Kern: Über die radioaktiven Partikel in der Spaltproduktivität der Atmosphäre, Nukleonik, 1960 (203-213)

W.Kern: Über die radioaktiven Partikel in der Spaltproduktivität der Atmosphäre, Nukleonik, 1963, 203-213

Y.S.Kim, M.C.Lee, K.D.Kim, M.J.Song, Y.B.Chun, G.S.You, D.K.Min, E.K.Kim, H.S.Jun, D.S.Shuh, H.T Park, J.H.Hong: Hydrindring Failure Analysis Based on PIE Data, Proceedings of Int. Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, Utah, April 2000 (CD-rom)

Koch-Sztrókay: Ásványtan II., Tankönyvkiadó, Budapest, (1967)

V.T.Kolobaskin, P.T Riszdov, P.A.Rizsanszkiny, B.D. Szidorenko: Radacionnye Karakterisztiki Ablucsenneva Jagernava Topliva, Energo Atomizdat, Moszkva, (1983)

Zs. Kocsis, T. Lengyel: Assessment of the Radioactivity of Environmental Samples by SSNTD Technique, Nucl.Tracks Radiat. Meas., 1991, pp769-774

Koen H.A. Janssens, F.C.V. Adams A. Rindby: Microscopic X-ray Fluorescence Analysis, (2002), John Wiley and Sons Ltd.

Kolobaskin V.M., Rubcov P.M., Ruzsanszkij P.A., Szidorenko V.D.: Radiacionnye karakterisztikai oblucsennova jagernovo topliva, Energoatomizdat, Moszkva, 1983

KURCSATOV INTÉZET: Oroszországi „Kurcsatov Intézet” tudományos Központ Nukleáris Reaktorok Intézete: „A kezettarancsolódás következményeinek felszámolása a Paksi Atomerőmű 2. blokk 1.sz. aknájában/ „A radioaktív szennyezettség kiértékelése az 1.sz. akna és a pihentető medence berendezéseire és anyagaira”, 2004

C.M. Ledererer, V.D.Shirley: Table of Isotopes, John Wiles and Sohns, Inc. (1978)

T.Mamuro, A. Fujita, T.Matsunami, K.Yoshikawa: Microscopic Examination of Highly Radioactive Fall-Out Particles, Nature 10Nov 1962, pp 529-531

I.G.Mandjukov, B.V.Manjukova, A. Alexiev, T.S.Andreev: High activity hot particles in Kozloduy Nuclear Power Plant- status of the investigations, Radiation Protection Dosimetry (1994), pp. 133-138

Markov D.V., Smirnov V. P., Smirnov A. V., Perepelkin S.O., Polenok V. S.: Integration of Post-Irradiation Results of Failed VVER Fuel Rods, 5th International Conference on WVER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support, Albena Congress Center near Varna, Bulgaria, 29 Sept-3 Oct 2003

D.T.Moore, J.N.Beck, D.K.Miller,P.K.Kuroda: Radioactive Hot Particles from Recent Chinese Nuclear Weapon Tests, *Journal of Geographical Research*, Vol.78, No. 30, pp. 7039-7050, (1973)

Möller W., Burmester M.:Calculation of Passive Neutron Emission from Spent WWER-440 Type Fuel; Report SAAS-347 (Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz) Berlin, (1987)

Nagy Lajos Gy., Nagyné L.K.: Radiokémia és izotóptechnika, (1997), Budapest, Műegyetemi Kiadó
Osán, Alsecz, Török, M. Betti, M. Eriksson: Környezeti forró részecskék vizsgálata mikronyalábos röntgenfluoreszcenciával és –abszorpcióval (2003. dec. 4-5.)
Nukleáris Technikai Szimpózium- Budapest

J. Pálfalvi, Gy. Lancsarics, I. Fehér, L. Sági: Alpha Spectrum of " Hot Particles" Determined by CR-39 SSNTD, *Nucl.Tracks Radiat.Meas.*, 1988, pp. 779-782

E. Piasecki, P. Jaracz, S. Mirowski: Analysis of gamma-radioactivity of „hot particles” released after the Chernobyl accident, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 141, (1990) pp.221-242

Pintér A., Horváth L., Matus L., Nagy I., Windberg P., Hózer Z.: Hasadási termékek reakciói a burkolatanyagokkal, OAH/NBI-ABA-18/01, 2001 október

A. Pintér-Csordás, L. Matus, A. Czitrovski, P. Jani, L. Maróti, Z. Hózer, P. Windberg and R. Hummel: Investigation of aerosols released at high temperature from nuclear reactor core models, *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 282, Issues 2-3, (2000. Dec.), pp. 205-215.

Pozsgai Imre: A pásztázó elektronmikroszkópia és elektronsugaras mikroanalízis alapjai, KLTE, 1994

R. Pöllänen, T.K. Ikaheimonen, S.Klemola, J. Juhanoja: Identification and analysis of radioactive particle in a marine sediment sample, *Journal of environmental Radioactivity* 45 (1999), 149-160

R.Pöllänen, H. Toivonen: Skin dose calculations for uranium fuel particles below 500µm in diameter, *Health Physics* (1995), pp. 401-405

R. Pöllänen, I. Valkama, H. Toivonen Transport of Radioactive Particles from the Chernobyl Accident, *Atmospheric Environment* vol.31,3575-3590, (1997)

R. Pöllänen (2): Highly radioactive ruthenium particles released from the Chernobyl accident: particle characteristics and radiological hazard: *radiation Protection Dosimetry*, 23-32(1997)

R. Pöllänen (3): Nuclear Fuel Particles and Radiological Hazard, Licentiate Thesis (1997), University of Helsinki Department of Physics

R. Pöllänen: Nuclear fuel particles in the environment- characteristics, atmospheric transport and skin doses, STUK-A188, 2002 May

R. Pöllänen, A. Kansanaho, H. Toivonen: Detection and analysis of radioactive particles using autoradiography, Report task FIN A845 on the Finnish support programme to IAEA safeguards, STUK-YTO-TR 99, (February 1996)

Radnóczy György: A transzmissziós elektronmikroszkópia és elektrondiffrakció alapjai, KLTE,1994

Saari S. Luokkanen, M. Kulmala, S. Lehtinen, T. Raunemaa: Isolation and Characterization of Hot Particles from Chernobyl Fallout in Southwestern Finland, *Health Physics* 57(6), 957-984, 1998

B. Salbu, T. Krekling, D. Oughton, G. Ostby, V.A. Kashparov, T.L. Brand: Hot Particles in Accidental Releases from Chernobyl and Windscale Nuclear Installation, *Analyst* 119, 125-129, 1994

B. Salbu, T. Krekling, D. Oughton: Characterization of Radioactive Particles in the Environment, *Analyst* 123, 843-849, 1998

B. Salbu, K. Janssens, T. Krekling, D. Oughton: Micro-X Ray Absorption Tomography and Micro-XANES for Characterization of Fuel Particles, <http://www.esrf.fr/info/science/highlights/1999/chemistry/xanes.html> (1999)

B. Salbu: Actinides associated with particles, Plutonium in the Environment, 2001 121-138

- B. Salbu, T.Krekling, O.C.Lind, D.H. Oughton, M. Drakopoulos, A. Simionovici, I. Snigireva, A. Snigirev, T.Weitkamb, F.Adams, K.Janssens, V.A.Kasparov: High energy X-ray microscopy for characterization of fuel particles, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 467-468 (2001), pp. 1249-1252
- P. Schubert, U. Behrend: Investigations of Radioactive Particles from the Chernobyl Fall-out, Radiochimica Acta 41, 149-155 (1987)
- S.L. Simon, T. Jenner, J.C. Graham, A. Borchert: A Comparison of Macro- and Microscopic Measurements of Plutonium in Contaminated Soil from the Republic of the Marshall Islands, Journal of radioanalytical and Nuclear Chemistry (1995), 197-205
- A. Sinha, D.B. Bhawe, C.G. Panchal, A. Shyam, M.Srinivasan, V.M. Joshi: Position sensitive detection of individual nuclear particle scintillations using image intensifier tubes, Nucl. Instr. And Meth. In Phys.Res. B111 (1996) pp. 171-175
- J.Sisefsky: Debris from Test of Nuclear Weapons, Science 17 March 1961, pp.735-740
- UNSCEAR (1993): Sources and Effects of Ionizing Radiation, The United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York
- G. Tamborini, M. Betti, V. Forcina, T. Hiernaut, B. Giovannone, L. Koch: Application of secondary ion mass spectrometry to the identification of single particles of uranium and their isotopic measurement, Spectrochimica Acta PartB 53 (1998), 1289-1302
- Toivonen. H., Pöllänen R., Leppänen A., Klemola S., Lahtinen J., Servomaa K., Savolainen A.L., Valkama I.: A Nuclear Incident at Power Plant in Sosnovyy Bor, Russia, Health Physics (1992), pp. 571-573
- Vajda N.: Atomreaktorok fűtőelemeinek ellenőrzése új analitikai módszerek segítségével, Kandidátusi értekezés, BME-NTI, Budapest, 1994
- N. Vajda: Radioactive Particles in the Environment, (2001)
- N. Vajda: Fűtőelemvizsgálatok normál üzemi körülmények között: OAH/NBI-ABA-16/99, Kutatási részjelentés, (1999)
- N. Vajda: Fűtőelemvizsgálatok normál üzemi körülmények között: OAH/NBI-ABA-29/01, Kutatási jelentés, (2001),
- N. Vajda: Primerköröi technológiai közegek aktivitáskorlátoi megváltozásának megalapozása, OAH-nak készített tanulmány, BME- Nukleáris Technikai Intézet, (1998)
- Vajda N., Molnár Zs., Kerkápoly A., Pintér T., Zagyvai P.: Az üzemanyag szivárgása a paksi tisztítótartályban megsérült fűtőelemekből – II. Nukleáris Technikai Szimpózium, 2003.dec.4-5., Budapest, CD-rom
- Vajda, Nóra; Molnár, Zsuzsa; Kerkápoly, Anikó; Pintér, Tamás: Radiochemical Control of Damaged Fuel After the Cleaning Tank Incident at Paks Nuclear Power Plant; Proceedings of Int. Conference on Water Chemistry of Nuclear Power Plants, San Francisco, (11-14 Oct. 2004), CD-rom
- Vajda N (2): Primerkörből származó korrozíós szemcsék vizsgálata, 2. feladat: Korrozíós szemcsék mikroanalitikai és radioanalitikai vizsgálata (Kutatási részjelentés PA. Rt részére), BME-NTI (2004)
- Végh Gábor: Antropogén eredetű alfa-sugárzó izotópok elemzése, Diplomamunka, BME-NTI (1999), pp.8
- A.Vértes, S. Nagy, Z.Klencsár: Handbook of Nuclear Chemistry, Instrumentation, Separation Techniques, Environmental Issues, Kluwer Academic Publishers, London, (2003)
- Dr Virágh Elemér: Sugárvédelmi ismeretek (Bp., 1990), pp. 95-98
- M. Wallenius, K. Mayer: Age determination of plutonium material in nuclear forensics by thermal isolation mass spectrometry, Fresenius J. Anal.Chem (2000) 366, 234-238

M. Wallenius: Origin determination of reactor produced plutonium by mass spectrometric techniques: Application to nuclear forensic science and safeguards, Academic dissertation, Helsinki 2001 (University of Helsinki, Faculty of Science, Department of Chemistry, Laboratory of Radiochemistry)

M. Wallenius, P. Peerani L. Koch: Origin determination of plutonium material in nuclear forensics, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 246 No.2 (2000), 317-321

H.H. Williard, L.L. Merritt, J.A. Dean, F.A. Settle: Instrumental methods of analysis, 1988 Wadsworth Publishing Company, 465-506

R. Yang, O. Ozer, H.S. Rosenbaum: Current Challenges and Expectations of High Performance Fuel for the Millennium, Proceedings of Int. Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, Utah, April 2000 (CD-rom)

V.I. Yoschenko, V.A. Kashparov, V.P. Protsak, J. Tschiersch: Autoradiographical methods for the assessment of radionuclides in hot particles on filter samples, Applied Radiation and Isotopes 58 (2003), pp.95-102

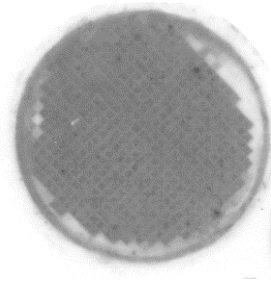
<http://laxmi.nuc.ucla.edu:8248>

www.kodak.com (Autoradiography Film Tips)

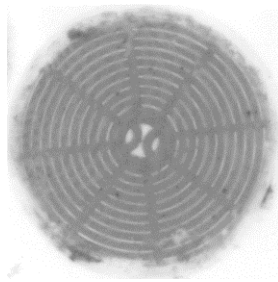
http://pingu.salk.edu/~sefton/Hyper_protocols/ARG.html

Melléklet

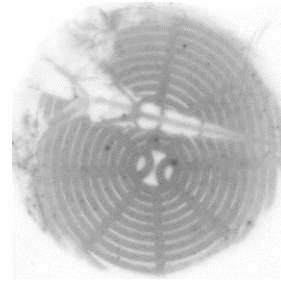
Normálüzemi szűrőminták autoradiográfiás képei *



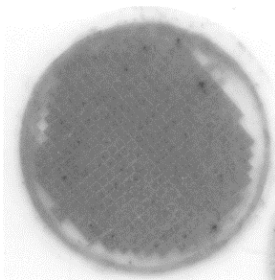
3/15A



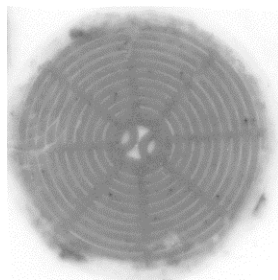
3/16A



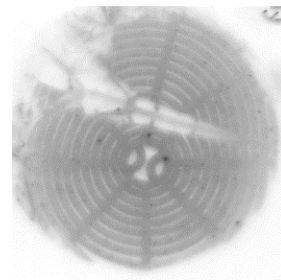
3/17A



3/15A

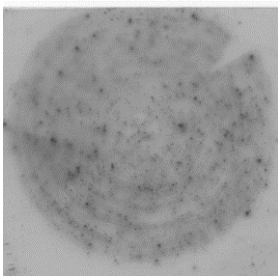


3/16A

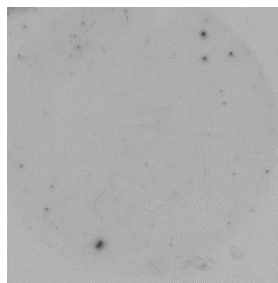


3/17A

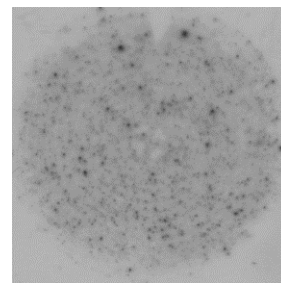
M1. ábrák 2001. 07. 21-24-i leállási mintákról készített felvételek Fortepan 100-as filmmel, 24 órás exponálási idővel. (A felvételek jól reprodukálhatónak bizonyultak.)



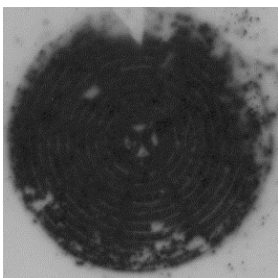
3/4A



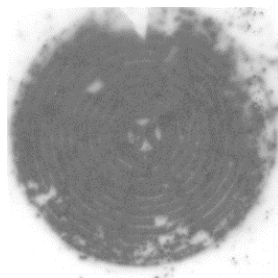
3/6A



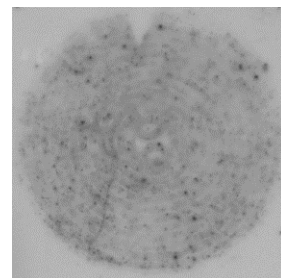
3/6B



3/9A



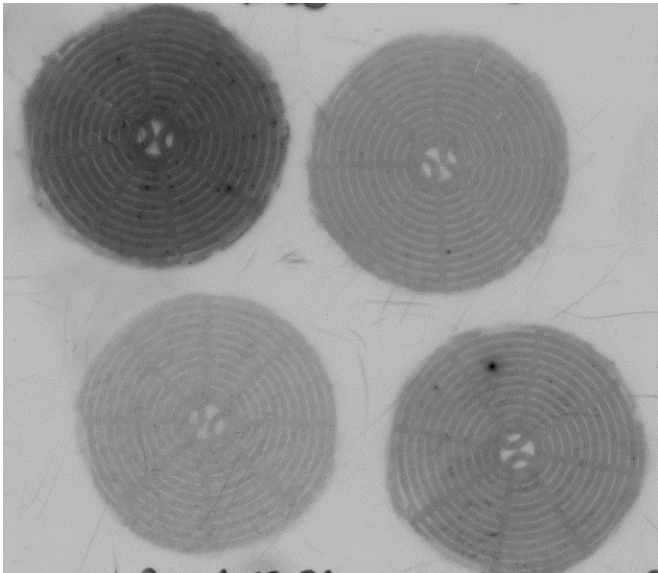
3/12A



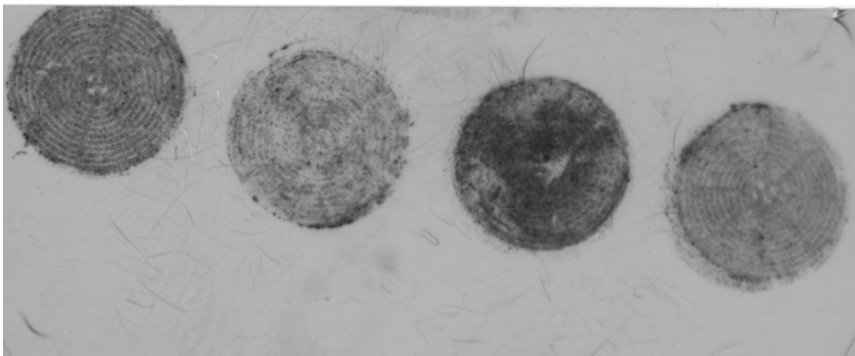
3/12A

M2. ábrák*_2001. 07. 21-24-i leállási szűrőkről készített felvételek Fortepan 100-as filmmel, 24 órás exponálási idővel

* A szűrőmintákon általában 1 l primervizet szűrtünk át. Ettől eltérő esetekben külön feltüntettem az átszűrt víz mennyiségét.

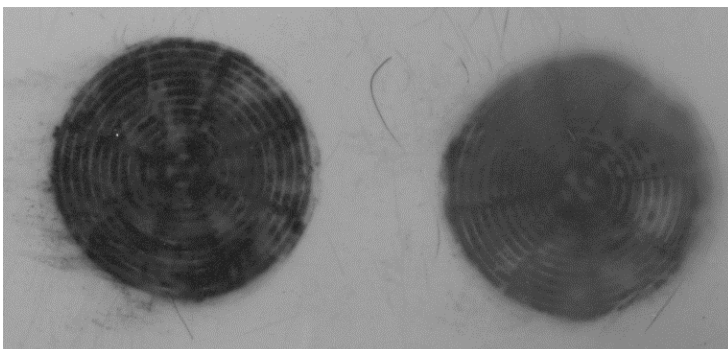


M3. ábrák 2001. 12. 25-27-i mintavétel szűrőiről készített felvételek Fortapan 100-as filmmel, 24 órás exponálási idővel (a bal felső sarokban a HP4 ill. a jobb alsó sarokban a HP5 jelű szűrő látható, melyekről részecskék is lettek elkülönítve)

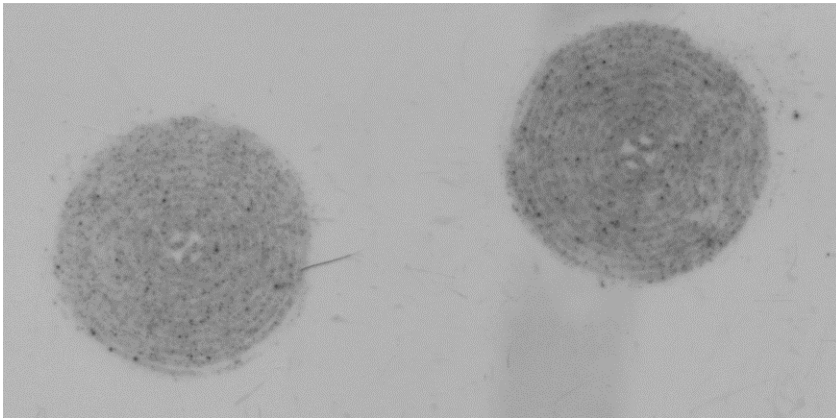


3/1 3/2 3/3 3/5

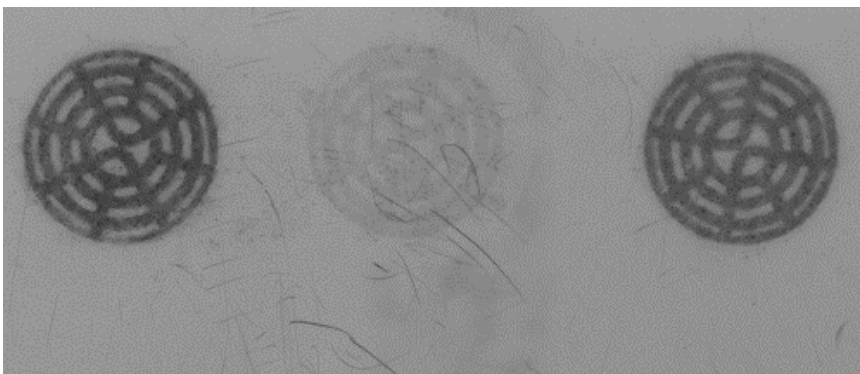
M4. ábrák 2002-es leállási szűrőminták autoradiográfiai képei, Fortepan 100 filmmel, 24 órás exponálási idővel. (A minták sokkal homogénebbek és sokkal kisebb méretű részecskéket tartalmaznak, mint a korábbiak.)



M5. ábrák 2002-es leállási minták autoradiográfiai képei Fortepan 100 filmmel, 2 órás exponálási idővel (Figyelemre méltó, hogy a minták nagy aktivitása miatt, még a 2h-ás exponálási idővel is nagyon fekete képeket kaptunk. A képen nem láthatók részecskék, homogének a minták.)

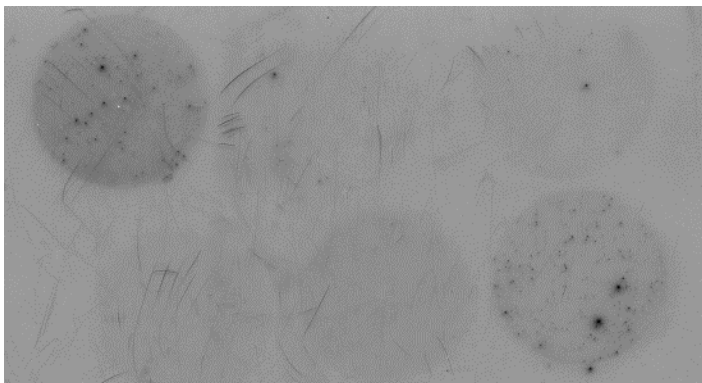


M6. ábrák 2002-es nem leállási mintavételből származó minták felvételei Fortepan 100-as filmmel, 1 hetes exponálási idővel.

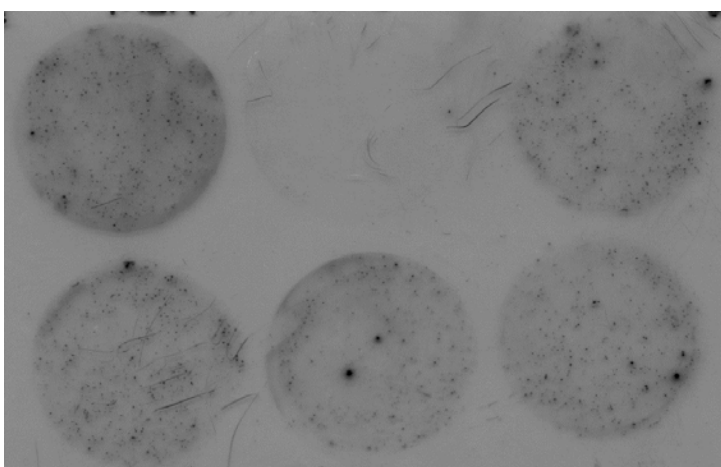


M7. ábrák 2003-as leállási szűrőminták felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 1 napos exponálás, a szűrőkön 1 l ill. 500-500ml 3-as blokki primervíz szűrtünk át

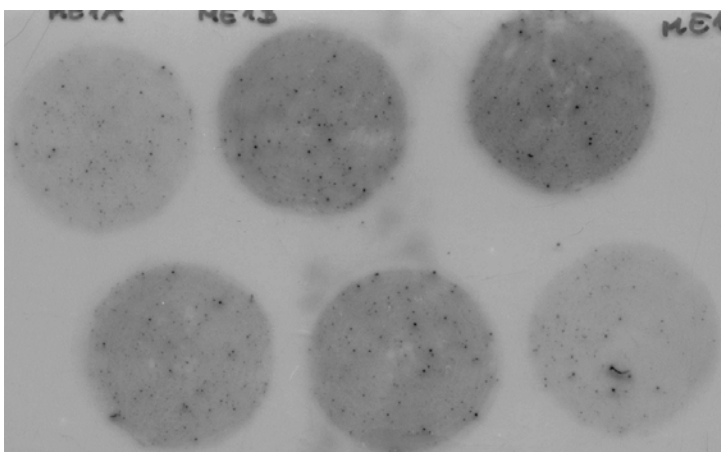
Üzemzavari szűrőminták autoradiográfiás képei*



M8. ábra 2003. 04. 17-i szűrőminták autoradiográfiás képei Fortepan 100-as filmmel, 4205 perces exponálással (A jobb oldali két szűrőről az ME2B ill. YA2 részecske lett elkülönítve.)

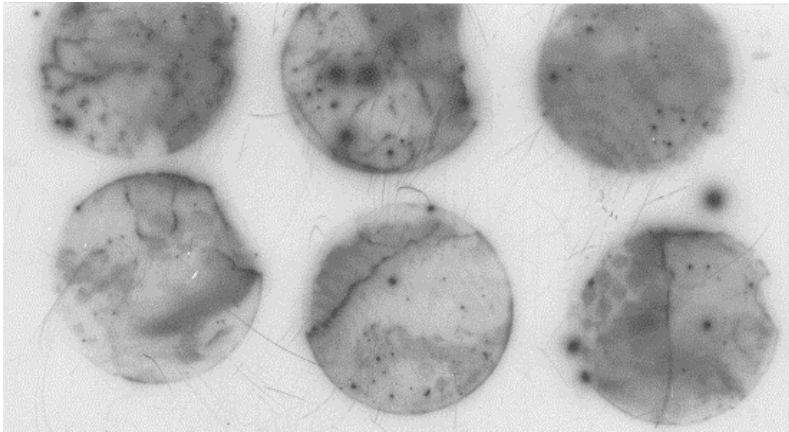


M9. ábra 2003. 04. 17-i szűrőminták autoradiográfiás képei Fortepan 100-as filmmel, 4320perces exponálással (Az alsó három szűrőről az YA2D, az YA2E ill. az YA2F jelű részecske lett elkülönítve.)



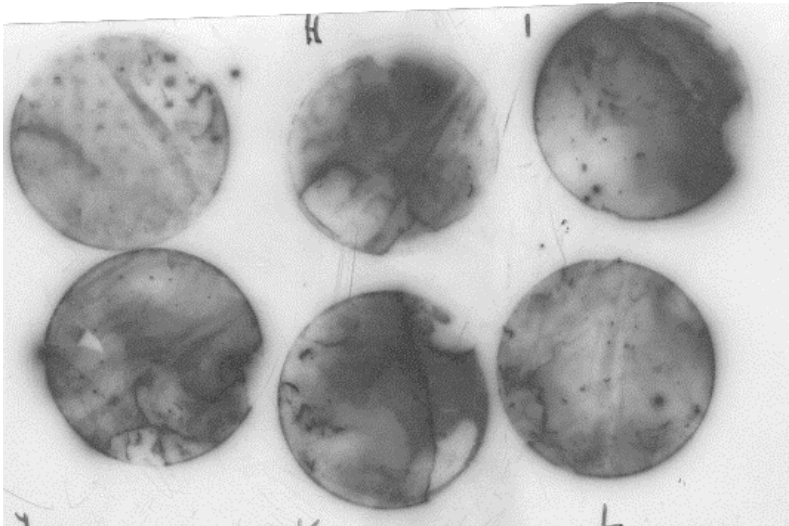
M10. ábra 2003. 04. 17-i szűrőminták autoradiográfiás képei Fortepan 100-as filmmel, 4320perces exponálással (A bal felső szűrőről az ME1A, a jobb alsó szűrőről az ME1F jelű részecske lett elkülönítve.)

* A szűrőmintákon általában 1 ml üzemzavar következtében szennyeződött vizet szűrtünk át. Ettől eltérő esetekben külön feltüntettem az átszűrt víz mennyiségét.



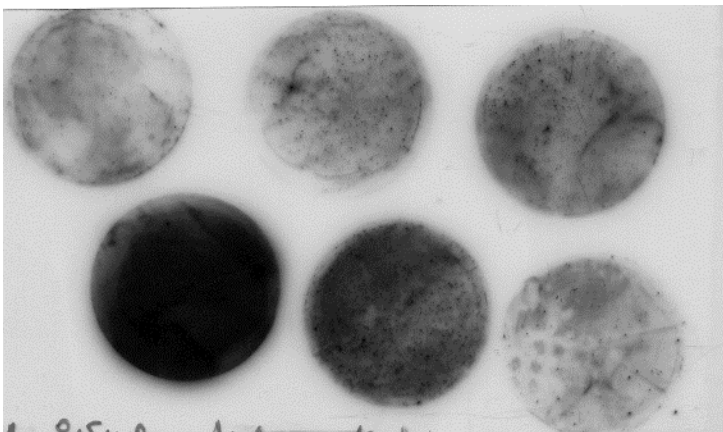
M11. ábra 2004. 02. 02-i szűrőminták autoradiográfias képei, Fortepan 100-as filmmel, 1420 perces exponálással

(A bal felső szűrőről M1 és M2, felső középső szűrőről N1, N2, N3, jobb felső szűrőről O1 részecske lett elkülönítve. A jobb alsó szűrőről az S1 ill. S2 jelű részecske található, valamint a szűrő mellett található, az üveglapról levett részecske.)

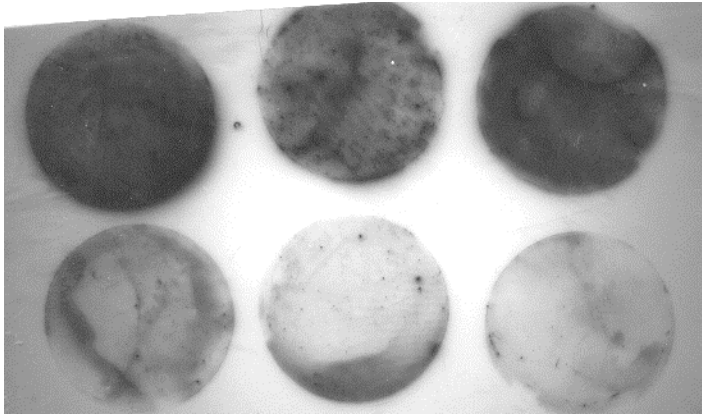


M12. ábra 2004. 02. 02-i szűrőminták autoradiográfias képei, Fortepan 100-as filmmel, 1420 perces exponálással, 1410 perces exponálással

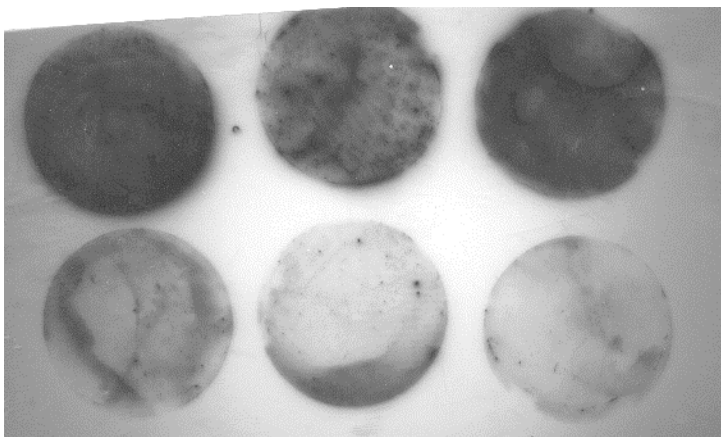
(A jobb felső szűrőről az II jelű, a bal alsó szűrőről a J2 jelű, a jobb alsó szűrőről az L1 jelű részecske lett elkülönítve.)



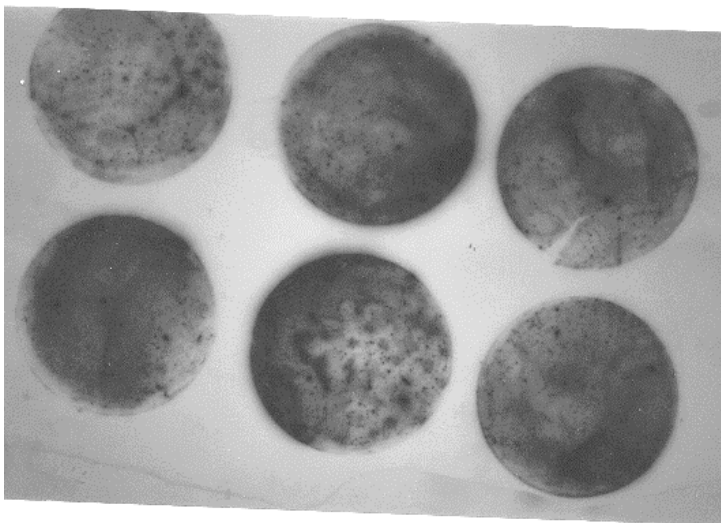
M13. ábra 2004. 02. 02-i szűrők autoradiográfias felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 1640 perces exponálással, (A felvételek alufóliás letakarással készültek, a szűrőkről nem lettek részecskék elkülönítve.)



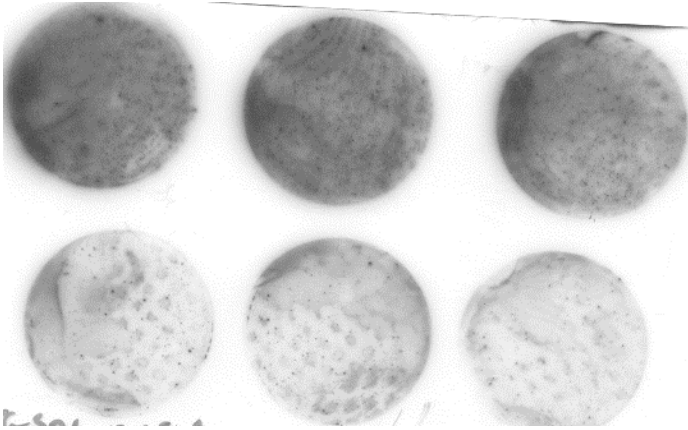
M14. ábra 2004. 02. 02-i szűrők autoradiográfias felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 1640 perces exponálással, (A felvételek alufóliás letakarással készültek, a szűrőkről nem lettek részecskék elkülönítve.)



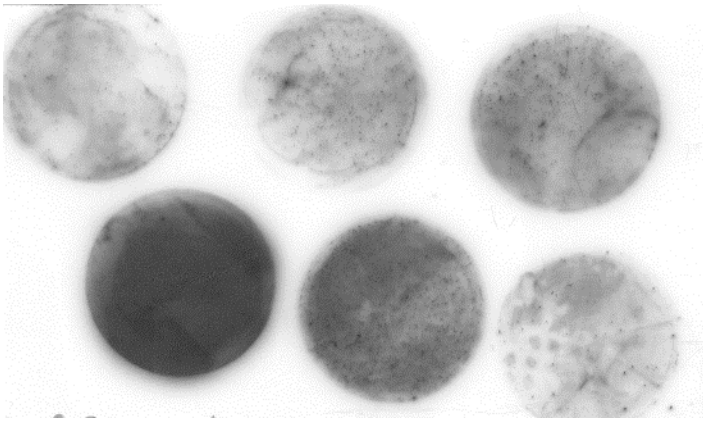
M15. ábra 2004. 04. 19-i szűrőminták autoradiográfias felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 4520 perces exponálással (A felvételek alufóliás letakarással készültek. A két középső szűrőről a G HP ill. a H HP jelű részecske lett elkülönítve.)



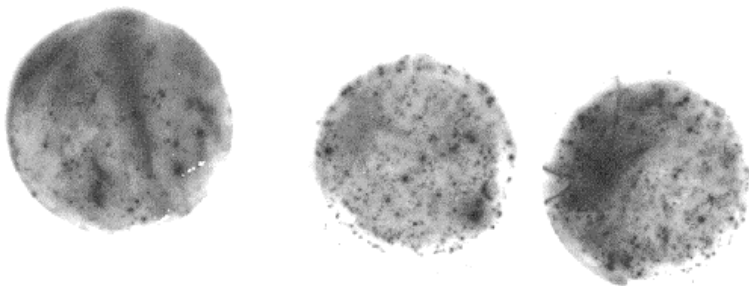
M16. ábra 2004. 04. 19-i szűrőminták autoradiográfias felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 1780 perces exponálással (A felvételek alufóliás letakarással készültek. A felső jobb szűrőről az E HP jelű, az alsó középső és jobb oldali szűrőről az F HP ill. a D HP jelű részecske lett elkülönítve.)



M17. ábra 2004. 04. 19-i szűrőminták autoradiográfias felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 1780 perces exponálással
(A jobb és a középső, felső szűrőről az A HP ill. a B HP jelű részecske lett elkülönítve.)



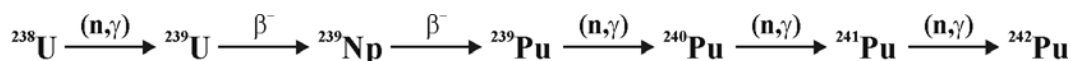
M18. ábra 2004. 04. 19-i szűrőminták autoradiográfias felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 1780 perces exponálással
(A felvételek alufóliás letakarással készültek. A középső felső szűrőről a C HP jelű részecske lett elkülönítve.)



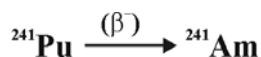
M19. ábra 2004. 04. 19-i szűrőminták autoradiográfias felvételei, Fortepan 100-as filmmel, 2640 perces exponálással
(A felvételek alufóliás letakarással készültek. A bal szűrőről az 1A és az 1B jelű részecske, a középsőről a 2A jelű részecske lett elkülönítve.)

Aktinidák keletkezésének sémái az üzemanyag kiégése során

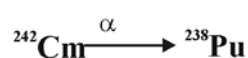
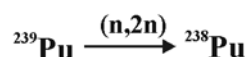
A Pu izotópok a ^{238}U transzmütációja révén keletkeznek az alábbi séma szerint:



A ^{241}Pu bétabomlással alakul ^{241}Am -á:

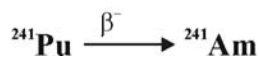
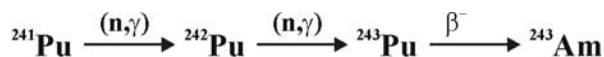


A ^{238}Pu három különböző módon keletkezik a reaktor üzemeltetése során:

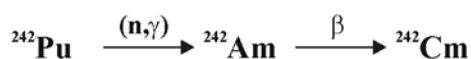
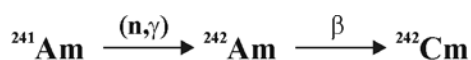


A ^{239}Pu és ^{240}Pu keletkezéséhez a ^{243}Cm és a ^{244}Cm elhanyagolható járulékot ad. A ^{242}Pu mennyisége lényegesen kisebb, mint a többi Pu izotópé, ezért használják fel a fűtőelem meghibásodások vizsgálatokor a $^{239,240}\text{Pu}$ és ^{238}Pu mérését. A ^{237}Np izotóp ugyan hosszú felezési idejű, kimutatására azonban csekély alfaaktivitása miatt csak a nagykiégésű fűtőelemek esetében van mód.

A hosszú felezési idejű ^{241}Am és ^{243}Am izotóp az alábbiak szerint keletkezik, a ^{243}Am izotóp mennyisége lényegesen kisebb, mint a ^{241}Am mennyisége. A fűtőelem-meghibásodások kimutatása ezért a ^{241}Am aktivitásának mérésével lehetséges.



A Cm izotópok közül a fűtőelem-meghibásodások kimutatásában a két hosszabb felezési idejű izotóp, a ^{242}Cm és a ^{244}Cm izotóp játszik szerepet. A két izotóp az alábbi reakciókban keletkezik:



A fűtőelem-meghibásodások vizsgálata során mérendő alfasugárzó nuklidok jellemzői

Izotóp	Jellemző.ox. fok	Sugár-zása	Absz. gyak.	T _{1/2}	Bomlási E [MeV]
²³⁵ U	+4,6	α	100%	7,038*10 ⁸ év	4,6% 4,598 3,7% 4,557 57 % 4,397 18 % 4,367 5,7% 4,217 11% egyéb
²³⁸ U	+4,6	α	100%	4,470*10 ⁹ év	77 % 4,196 23 % 4,149
²³⁴ U (nyomjelző)	+4,6	α	100%	2,45*10 ⁵ év	72% 4,777 28% 4,724 84,4% 4,824 13,2% 4,783
²³² U	+4,6	α	100%	71,79év	68,7% 5,320 31,2% 5,264
²³⁸ Pu	+6,4,(3)	α	100%	87,74év	71,1%5 ,499 28,7% 5,457
²³⁹ Pu	+6,4,(3)	α	100%	2,411*10 ⁴ év	73,3%5,155 15,1% 5,143 11,5% 5,105
²⁴⁰ Pu	+6,4,(3)	α	100%	6563év	75,5% 5,168 24,4% 5,123
²⁴² Pu (nyomjelző)	+6,4,(3)	α	100%	3,763*10 ⁵ év	74 % 4,9009 26 % 4,8566
²⁴¹ Am	+3	α γ ekonv/γ	100% 36,3% 0,18	432,2év	86,0% 5,486 12,7% 5,443 1,3% 5,389 59,5keV γ ~45 keV
²⁴³ Am (nyomjelző)	+3	α γ ekonv	100% 66% 34%	7370év	87,9% 5,275 10,6% 5,234 1,1% 5,181 75,0 keV γ 86,8 keV γ ~60 keV
²⁴² Cm	+3	α γ	100% 11,4%	162,76nap	74,0% 6,113 26,0% 6,070 14,3 keV γ
²⁴⁴ Cm	+3	α	100%	18,099év	76,7% 5,805 23,3% 5,764

M1. táblázat A fűtőelem-meghibásodások vizsgálata során mérendő alfasugárzó nuklidok jellemzői (Végh, 1999)

Környezeti mintákban előforduló, alfa- ill. gamma-spektrometriával mért nuklidok jellemzői

Izotóp (megjegyzés)	Felezési idő	Energia (keV)	"Gammagyakoriság"
¹³⁴ Cs	2,06 év	475,4	0,0147
		563,3	0,0838
		569,3	0,1543
		604,7	0,9756
		795,8	0,8544
		801,8	0,0873
		1038,5	0,0100
		1167,9	0,0181
¹³⁷ Cs	30,17 év	661,6	0,8500
		32,2	0,5800
¹²⁹ I	1,57*10 ⁷ év	29,7	0,550
		33,6	0,100
		34,4	0,022
		39,6	0,075
²⁴¹ Am	458,0év	59,54	0,353
²¹⁴ Bi*	19,9 perc	295.2	0.187
		351.9	0.358
		609.3	0.45
		1120.3	0.149
		1238.1	0.0596
		1377.7	0.0415
		1408	0.0251
		1729.6	0.0306
		1764.5	0.1607
		1847.4	0.0214
		2204.1	0.0506
2447.7	0.0157		
²²⁶ Ra*	1600év	81,87	0,002
		83,78	0,004
		94,7	0,0013
		97,60	0,0004
		186,0	0,04
²²⁸ Ac**	6,1 óra	209.4	0.0436
		911.1	0.278
		964.6	0.0523
		968.9	0.1674
		1587.9	0.0356

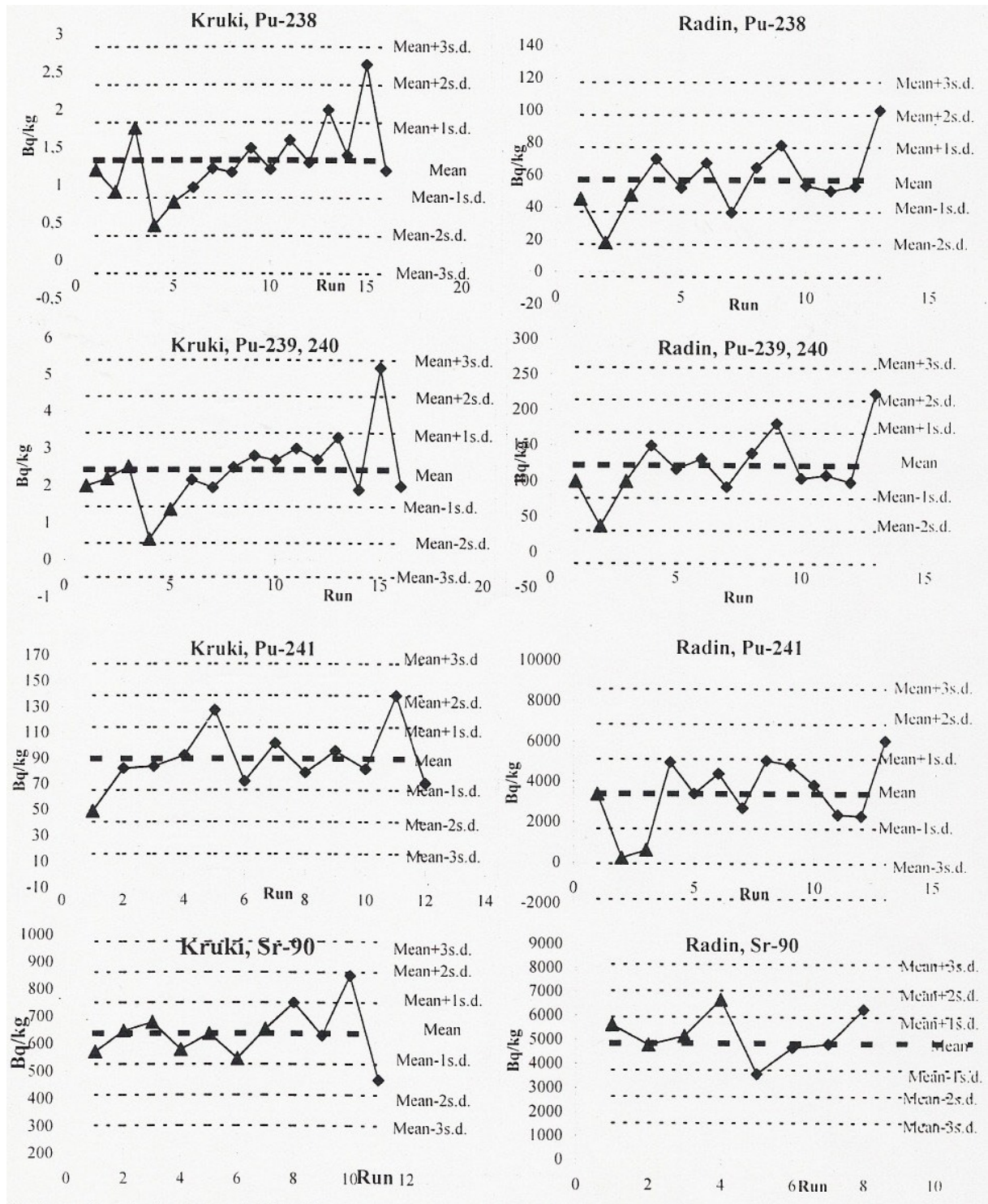
M2.táblázat Gamma ill. röntgen vonallal rendelkező izotópok adatai (Browne, 1995), (GSANAL program izotópkönyvtára), (Blaauw, 1996)

Megjegyzés: * a ²³⁸U bomlási sorából származó leányelem (a spektrumok kiértékelésekor használt nagyobb gyakoriságú vonalakat tartalmazza csak a táblázat), ** a ²³²Th bomlási sorából származó leányelem (a spektrumok kiértékelésekor használt nagyobb gyakoriságú vonalakat tartalmazza csak a táblázat)

Izotóp (megjegyzés)	Felezési idő (év)	Energia (MeV)	Bomlási gyakoriság (%)
²²⁹ Th (nyomjelző)	7340	5,051	5,2
		4,968	6,4
		4,901	10,8
		4,845	56,2
		4,815	8,4
²²⁸ Th	1,91	5,423	72,7
		5,341	26,7
²³² Th	1,41*10 ¹⁰	4,011	77,0
		3,957	23,0
²³⁰ Th	9,03*10 ¹⁰	4,688	73,6
		1,621	23,4

M3. táblázat A környezeti minták elemzésekor meghatározott alfasugárzó Th izotópok adatai (Lederer –Shirley, 1978)

Környezeti minták összemérésének eredményei



M19. ábra A Kruki és Radin faluból származó talajminták oroszországi összemérésének eredményei