

# DOKTORI (PhD) ÉRTEKEZÉS

## KALIBRÁCIÓS MÓDSZER FEJLESZTÉSE PASSZÍV TORONMONITOROKHOZ

DOI:10.18136/PE.2017.664

Szerző: Fábián Ferenc  
Témavezető: dr. Kovács Tibor

Pannon Egyetem  
Mérnöki Kar  
Vegyészmérnöki- és Anyagtudományok Doktori Iskola  
Radiokémiai és Radioökológiai Intézet  
2017

**KALIBRÁCIÓS MÓDSZER FEJLESZTÉSE PASSZÍV  
TORONMONITOROKHOZ**

Értekezés doktori (PhD) fokozat elnyerése érdekében

Írta:  
Fábián Ferenc

Készült a Pannon Egyetem Vegyészmérnöki- és Anyagtudományok Doktori Iskolája  
keretében

Témavezető: Dr. Kovács Tibor

Elfogadásra javasalom (igen / nem)

(aláírás)

A jelölt a doktori szigorlaton..... % -ot ért el,

Az értekezést bírálóként elfogadásra javasalom:

Bíráló neve: ..... igen /nem

.....  
(aláírás)

Bíráló neve: ..... ) igen /nem

.....  
(aláírás)

Bíráló neve: ..... ) igen /nem

.....  
(aláírás)

A jelölt az értekezés nyilvános vitáján .....% - ot ért el.

Veszprém,

.....  
a Bíráló Bizottság elnöke

A doktori (PhD) oklevél minősítése.....

.....  
Az EDHT elnöke

## Tartalomjegyzék

<b>KIVONAT</b> .....	<b>4</b>
<b>ABSTRACT</b> .....	<b>5</b>
<b>ABSTRAKT</b> .....	<b>6</b>
<b>I. BEVEZETÉS, CÉLKITŰZÉS</b> .....	<b>7</b>
<b>II. SZAKIRODALMI ÖSSZEFOGLALÓ</b> .....	<b>10</b>
<b>II.1. A sugárterhelés forrásai</b> .....	<b>10</b>
II.1.1. Természetes eredetű sugárterhelés .....	10
II.1.1.1. Kozmikus sugárzás.....	11
II.1.1.2. Terresztriális sugárzás .....	11
II.1.2. Mesterséges eredetű sugárterhelés .....	14
<b>II.2. A radon és a toron</b> .....	<b>14</b>
II.2.1. A radon izotópjai .....	14
II.2.1.1. Radon (Rn-222).....	15
II.2.1.2. Toron (Rn-220) .....	15
II.2.2. A radon/toron és leányelemeinek egészségügyi hatásai .....	16
II.2.3. A radon/toron migrációs folyamatai .....	17
II.2.3.1. Emanáció.....	17
II.2.3.2. Exhaláció.....	19
II.2.3.3. Az emanációt és exhalációt befolyásoló tényezők .....	20
II.2.4. A radon/toron beltéri feldúsulása .....	21
II.2.4.1. A beltéri radonkoncentrációra vonatkozó szabályozás .....	24
II.2.4.2. Beltéri radon/toron felmérések.....	25
<b>II.3. Radon/toron mérési módszerek</b> .....	<b>28</b>
II.3.1. Passzív mérési technikák.....	29
II.3.1.1. A szilárdtest nyomdetektorok működési elve .....	29
II.3.1.2. Passzív toronmonitor kifejlesztésére irányuló kutatások .....	30
II.3.2. Toronmérés szcintillációs detektorokkal.....	31
II.3.3. Radon/toron exhaláció mérése akkumulációs módszerrel .....	33
<b>II.4. Toronmonitorok kalibrálása</b> .....	<b>34</b>
II.4.1. Kalibrációs kamrák .....	34
II.4.2. Toronforrás készítési eljárások .....	35
<b>II.5. Radioaktív egyensúlyok</b> .....	<b>37</b>
II.5.1. Szekuláris egyensúly .....	38
II.5.2. Tranziens egyensúly.....	39

II.5.3. Nincs egyensúly .....	40
II.5.4. Bomlási sorok aktivitásviszonyainak leírása .....	41
<b>II.6. Radonmentes toronforrás készítésének lehetséges módjai .....</b>	<b>41</b>
II.6.1. Természetes bomlási sorok egyensúlyi viszonyai.....	41
II.6.2. Az aktínium és a tórium tulajdonságai.....	43
II.6.2.1. Aktínium .....	43
II.6.2.2. Tórium.....	43
II.6.3. Ioncserés elválasztás .....	44
<b>III. KÍSÉRLETI RÉSZ.....</b>	<b>47</b>
<b>III.1. Kamrafejlesztés .....</b>	<b>47</b>
III.1.1. Hőmérséklet-szabályozás.....	47
III.1.2. Páratartalom-szabályozás.....	48
III.1.2.1. A páratartalom-szabályozó rendszer kialakítása.....	48
III.1.2.2. A páratartalom hatása a toronkoncentrációra .....	50
III.1.3. A kamra tömítésének vizsgálata .....	51
III.1.4. Toronkoncentráció térbeli homogenitásának vizsgálata.....	53
III.1.4.1. Térbeli homogenitás vizsgálata nyomdetektoros méréssel.....	53
III.1.4.2. Térbeli homogenitás vizsgálata mintavételes méréssel .....	55
III.1.5. Aeroszol koncentráció és részecskeméret-eloszlás szabályozása.....	56
III.1.6. A kalibráló kamra javasolt paraméterei .....	59
<b>III.2. Referencia eljárás.....</b>	<b>61</b>
III.2.1. Toronkoncentráció meghatározása félvezető detektoros gamma-spektrometrián alapuló emanációméréseken keresztül.....	62
III.2.2. Toronkoncentráció meghatározása szcintillációs módszerrel.....	65
III.2.2.1. A számítás bemutatása .....	68
III.2.2.2. Az összemérés eredményei .....	71
III.2.3. Javasolt referencia eljárás .....	75
<b>III.3. Forrásfejlesztés .....</b>	<b>76</b>
III.3.1. Kerámiaalapú toronforrások .....	76
III.3.1.1. Referencia anyag készítése .....	77
III.3.1.2. Elemösszetétel és pórusméret-eloszlás meghatározása .....	77
III.3.1.3. Toronemanáció meghatározása akkumulációs módszerrel.....	78
III.3.1.4. A kerámiaforrásokkal végzett vizsgálatok eredményei .....	79
III.3.2. Gázharisnya-alapú toronforrások.....	85
III.3.3. Radonmentes toronforrás készítésére irányuló kísérletek .....	86
III.3.3.1. Tórium- és aktíniumelválasztás esetén várható aktivitásviszonyok ....	87
III.3.3.2. A vizsgált szeparációs eljárások bemutatása .....	91

III.3.3.3. A szeparációs eljárások eredményei .....	97
III.3.4. A forrásfejlesztésre irányuló kísérletek értékelése .....	99
<b>III.4. Kalibráció.....</b>	<b>100</b>
III.4.1. Kalibrációs módszer .....	100
III.4.2. Kalibrációs tesztmérések .....	103
III.4.3. Toronmonitorok kimutatási határának meghatározása .....	107
III.4.3.1. Számítási módszer .....	107
III.4.3.2. A toronmonitorok kimutatási határának meghatározása során kapott eredmények.....	111
III.4.3.3. A toronmonitorok kimutatási határának meghatározása során kapott eredmények értékelése .....	113
III.4.3.4. Az aktivitáskoncentráció hatása a kimutatási határra .....	114
III.4.4. Az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány szerinti akkreditáció feltételei .....	122
III.4.4.1. Környezeti feltételek.....	122
III.4.4.2. Alkalmazott módszerek és azok validálása .....	123
III.4.4.3. Berendezések .....	124
III.4.4.4. Mérések visszavezethetősége .....	124
<b>IV. ÖSSZEFOGLALÁS .....</b>	<b>126</b>
<b>IRODALOMJEGYZÉK.....</b>	<b>128</b>
<b>FÜGGELÉK .....</b>	<b>142</b>
<b>TÉZISEK .....</b>	<b>169</b>
<b>THESES .....</b>	<b>172</b>
<b>PUBLIKÁCIÓS TEVÉKENYSÉG .....</b>	<b>175</b>
<b>KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS .....</b>	<b>179</b>

## KIVONAT

### Kalibrációs módszer fejlesztése passzív toronmonitorokhoz

A hosszú távú radon/toron felmérések során elterjedten alkalmazott passzív monitorok kalibrációjához stabil, jól szabályozható kamrára van szükség. Ehhez nélkülözhetetlen bizonyos paraméterek (hőmérséklet, páratartalom, aeroszol koncentráció) szabályozása és monitorozása, valamint a megfelelő szigetelés biztosítása. A kamrafejlesztés során ezen szabályozási feladatokat valósította meg a szerző, homogenitási és stabilitási vizsgálatokat végezett, valamint vizsgálta a páratartalom, mint emanáció szempontjából meghatározó paraméter hatását a kamrában kialakuló toronkoncentrációra.

A következő lépésben a megfelelő toronmérési referencia eljárás megadása volt a cél. A szerző a kísérletek során a szcintillációs és gamma-spektrometriás eljárásokat tesztelte. Az eredmények alapján a Lucas-cellás mintavételt követő Pylon AB-5 műszerrel történő impulzusszámlálást javasolja referencia eljárásként.

A továbbiakban a szerző vizsgálatokat végezett a toronforrások fejlesztésére vonatkozóan. A vizsgált forrástípusok közül a 200 °C-on hőkezelt kerámia alapú toronforrások alkalmazását javasolja. Ezen felül vizsgálta a forrás radonmentesítésének lehetőségeit. Modellszámítások alapján hatféle szeparációs eljárást tesztelt tórium és aktínium izotópok elválasztására. Ezek közül a  $\text{FeCl}_3$ -dal végzett csapadékképzésen alapuló aktíniumelválasztás sikeresnek bizonyult.

Végül a szerző megadott egy egzakt kalibrációs protokollt, amely alapján tesztméréseket végzett, majd az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány szerint meghatározta a módszer döntési küszöbét és kimutatási határát radon és toronmérésre, valamint a kimutatási határ aktivitáskoncentráció függését. A disszertáció végén összefoglalta az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány szerinti minősítéssel kapcsolatos információkat, melyek alapján megállapította, hogy az általa kifejlesztett eljárás alkalmassá tehető a szabvány szerint akkreditált kalibrálólaboratóriumban való alkalmazásra.

## **ABSTRACT**

### **Development of a calibration method for passive thoron monitors**

During the improvement of the chamber the control of temperature, humidity and aerosol concentration were solved, homogeneity and stability tests were performed, and the effect of humidity, as the most important parameter regarding the emanation, on thoron concentration inside the chamber was examined.

Scintillation techniques and gamma-spectrometry were tested as reference method for thoron measurement. Based on the results, sampling with Lucas cell and pulse counting with Pylon AB-5 instrument is proposed as reference method.

Among the examined source types the application of ceramic-based thoron sources treated on 200 °C is proposed. Based on model calculations six separation techniques had been chosen for laboratory tests to separate thorium and actinium isotopes. Among these actinium separation based on precipitation with  $\text{FeCl}_3$  was successful.

Finally, an exact calibration protocol was given and based on this test measurements were performed, then decision threshold and detection limit for radon and thoron measurement were calculated.

## **ABSTRAKT**

### **Entwicklung einer Kalibriermethode für passive Thoronmonitore**

Während der Entwicklung der Kammer wurden die Kontrolle von Temperatur, Feuchtigkeit und Aerosolkonzentration gelöst, Homogenität und Stabilitätstests durchgeführt, und die Wirkung der Feuchtigkeit wurde als der wichtigste Parameter bezüglich der Emanation auf die Thoronkonzentration innerhalb der Kammer untersucht.

Szintillationstechniken und Gamma-Spektrometrie wurden als Referenzmethode für die Thoronmessung getestet. Basierend auf den Ergebnissen wird die Probenahme mit Lucas-Zelle und Pulszählung mit Pylon AB-5 Instrument als Referenzmethode vorgeschlagen.

Unter den untersuchten Quellentypen wird die Anwendung von auf 200 °C behandelten Thoronquellen auf Keramikbasis vorgeschlagen. Basierend auf Modellrechnungen wurden sechs Trenntechniken für Labortests zur Trennung von Thorium- und Aktiniumisotopen gewählt. Unter diesen war Actinium-Trennungen auf Basis von Niederschlag mit  $\text{FeCl}_3$  erfolgreich.

Schließlich wurde ein exaktes Kalibrierprotokoll gegeben, und darauf basierend wurden diese Testmessungen durchgeführt, dann wurden die Entscheidungsgrenze und die Nachweisgrenze für die Radon- und Thoronmessung berechnet.



## I. BEVEZETÉS, CÉLKITŰZÉS

Napjainkban a daganatos megbetegedések okozta halálozások közül a légzőszervi daganatok aránya a legnagyobb férfiak, és a második legnagyobb nők esetében világviszonylatban [150]. A betegség kialakulásában bizonyítottan nagy szerepe van radon izotópjainak (elsősorban a Rn-222 – továbbiakban radon, és a Rn-220 – továbbiakban toron) és azok leányelemeinek.

Az utóbbi időben végzett felmérések rámutattak arra, hogy a toronkoncentráció pontos meghatározása több okból is szükséges. Egyrészt dozimetriai szempontból, mivel a toron és főként annak hosszú életű leányelemei okozta sugárterhelés nem minden esetben hanyagolható el. Ennek meghatározása a radonméréstől eltérő megközelítést kíván, hiszen a toron fő forrása általában nem az épületek alatti talajréteg, hanem az építőanyag. Szintén dozimetriai szempontból jelentős probléma, hogy a toron jelenléte az összes használt radonmérő berendezést zavarja, amely mérési pontatlansághoz vezet. A másik fontos terület a toronmérések geológiai alkalmazása. A toron – rövid felezési ideje miatt – jó nyomjelzőként használható különböző geokémiai, geofizikai folyamatok nyomon követésére.

A hosszú távú felmérések során az aktív mérőműszerek nehezen, vagy nem használhatók. Ezek helyett az integrális mérőeszközök, a nyomdetektorok használata terjedt el, ezért nagy figyelem fordult a radon/toron diszkriminatív detektorok kifejlesztésére. Jelenleg is folynak a kutatások ezen eszközök megfelelő kialakítására azzal a céllal, hogy azok jól használhatók legyenek a toron és leányelemeinek meghatározására. A Magyarországon kifejlesztett Radamon (MTA Atomki, Magyarország) és Raduet (Radosys Kft., Magyarország) detektorok nemzetközi összeméréseken kiváló eredményeket adtak a radon/toron diszkriminatív mérésére. Ezek a detektorok lehetővé teszik a toron és radon izotóptól származó alfa-részecskék szeparált megszámlálását, hiányosságuk azonban az, hogy nem alkalmas azok leányelemeinek meghatározására, mely fontos információ a pontos dózisbecsléshez. Ezért az utóbbi időben kifejlesztésre került egy passzív radon/toron leányelem detektor, melynek a továbbfejlesztése jelenleg is folyik a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében.

Az integrális detektorok használatához fontos azok kalibrációjának megoldása. Ehhez egy jól működő kalibráló kamrára van szükség. Megfelelő toronkamra kialakítása azonban bizonyos mérés technikai nehézségek (pl. toron rövid felezési ideje)

miatt a radonkamrához képest problémás. Az utóbbi időben a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében kialakításra került egy toronkamra, azonban az eddig elvégzett vizsgálatok rámutattak, hogy a pontosabb működés érdekében annak továbbfejlesztésére van szükség. Ezen felül szükséges a kalibrációs folyamat protokolláris megadása, amely magába foglalja a kalibrációs kamra és a folyamat egyéb paramétereit, valamint az alkalmazott referencia eljárást. Tehát a kutatás célja egy megfelelően működő toronkamra kialakítása a későbbi, nagy volumenű felmérés végrehajtásához szükséges nyomdetektorok kalibrálásához, valamint a kalibrációs folyamatra vonatkozó, minden részletre kiterjedő protokoll kidolgozása, amely megfelel az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány előírásainak [133].

A kamrafejlesztés legfontosabb célja az, hogy a kalibrációs térben lehetőségünk nyíljon minél több, a kalibrációs eljárást befolyásoló paraméter (pl. hőmérséklet, páratartalom, aeroszol-koncentráció) pontos meghatározására, esetleg szabályozására. Ehhez megfelelő szenzorok, mérőberendezések beépítése szükséges, melyek megfelelő pontosságú adatokat biztosítanak a további számításokhoz. A kamrafejlesztés során ezen szabályozási feladatokat valósítottam meg, homogenitási és stabilitási vizsgálatokat végeztem, valamint vizsgáltam a páratartalom, mint emanáció szempontjából meghatározó paraméter hatását a kamrában kialakuló toronkoncentrációra.

A következő lépésben a megfelelő referencia eljárás megadása volt a cél. Ehhez tanulmányoztam a szakirodalomban fellelhető kalibráló kamráknál alkalmazott megoldásokat. A toronmérés hitelesítésére általában szcintillációs számláló berendezést (NIRS, Japán [3]) vagy gamma-spektrometriás módszert (PTB, Németország [4]) alkalmaznak. Kísérleteim során ezen eljárásokat teszteltem és vettem össze az intézetünkben működő kalibráló kamrára optimalizálva. Az eredmények alapján javaslatot teszek a referencia eljárásra.

További fontos feladat egy nagy emanálóképességű, „radonmentes” (kis Ra-226 tartalmú) toronforrás készítésére alkalmas módszer fejlesztése. A Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében jelenleg három különböző aktivitású, hőkezelt, természetes tórium-nitrátot tartalmazó kerámiagolyókból készült toronforrás áll rendelkezésünkre, azonban a természetes összetételnek köszönhetően ezek Ra-226-ot tartalmaznak, ezért a radon zavaró hatásának kiküszöbölése érdekében új módszer fejlesztésére van szükség. Ez – a szakirodalomban fellelhető adatok alapján – többféleképpen valósítható meg. Általában vagy tórium-oxid tartalmú gázharisnyát

használnak toronforrásként (NIRS, Japán [1]), vagy – valamilyen kémiai szeparációs eljárást alkalmazása után – Th-228 elektrodepozíciós leválasztásával állítanak elő „szabadexhalációs” forrást (PTB, Németország [2]). A forrásfejlesztés során a fent említett lehetőségeket vizsgáltam meg és hasonlítottam össze.

A végső feladat magának a kalibrációs módszernek a pontos megadása, amely tartalmazza a kalibráló kamra és a kalibrációs folyamat releváns paramétereit, valamint megfelel az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány követelményeinek [133]. Ennek érdekében kalibrációs tesztméréseket végeztem a kalibrációs kamrában. Végül az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány alapján meghatároztam a módszer döntési küszöbét és kimutatási határát radon és toronmérésre, valamint a kimutatási határ aktivitáskoncentráció függését [5]. Ezen túl egy egyszerű empirikus összefüggést adtam meg, amely alkalmas a kimutatási határ értékének becslésére a várható koncentrációsintek ismeretében, valamint megvizsgáltam a módszer MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány szerinti minősítésének feltételeit.

## II. SZAKIRODALMI ÖSSZEFOGLALÓ

### II.1. A sugárterhelés forrásai

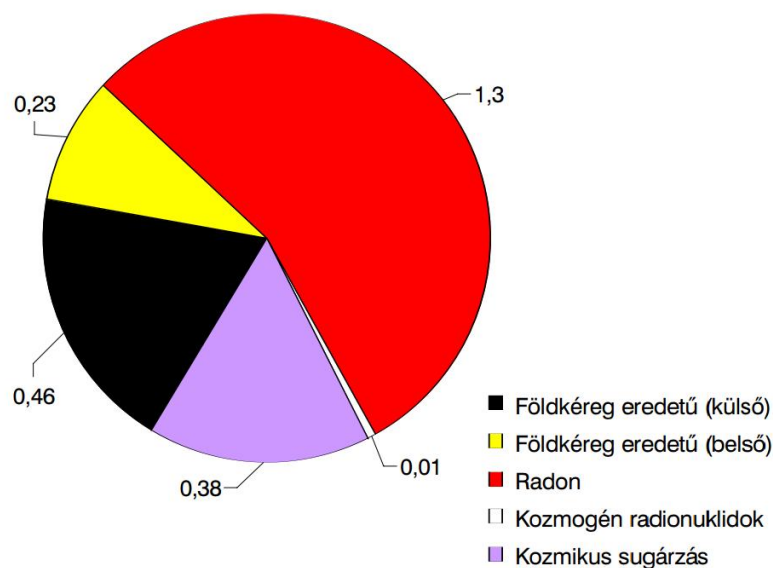
Alapvetően kétféle forrásból érheti sugárzás az emberi szervezetet: természetes és mesterséges. A következőkben összefoglalom ezek jellemzőit.

#### II.1.1. Természetes eredetű sugárterhelés

A természetes eredetű sugárterhelés a következő forrásokból származhat [6]:

- teresztriális (járuléka: 84,4 %);
- kozmikus (járuléka: 15 %);
- kozmogén radionuklidok (járuléka: 0,6 %).

A természetes sugárzás mértéke jelentősen függ az adott környezeti viszonyoktól (tengerszint feletti magasság, környezeti elemek radionuklid koncentrációja stb.). Népeséggel súlyozott világátlagos 2,4 mSv év<sup>-1</sup> [7]. A természetes háttérsugárzás összetevőit a II.1-1. ábra szemlélteti [8]. Az ábra alapján megállapítható, hogy a természetes eredetű sugárterhelés több mint fele a radonizotóptól és azok leányelemeitől származik.



II.1-1. ábra: A természetes háttérsugárzás összetétele [8]

### ***II.1.1.1. Kozmikus sugárzás***

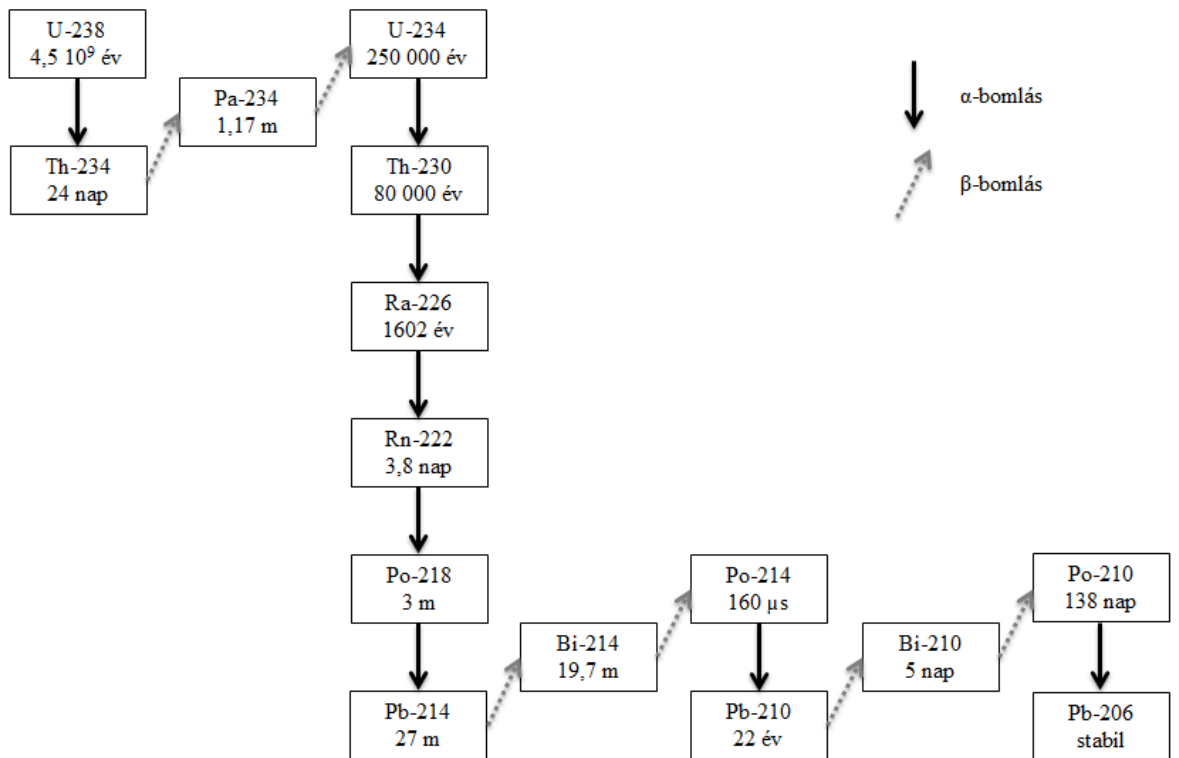
A kozmikus sugárzást a légkörbe érkező nagy energiájú részecskék okozzák. Eredetük szerint megkülönböztetünk:

- Galaktikus eredetű sugárzást, amely nagy energiájú protonokból (85 %), alfa-részecskékből (12 %), elektronokból (2 %) és nehezebb atommagokból (1 %) áll.
- Szoláris eredetű sugárzást, amely napkitörések során kibocsátott röntgen és UV fotonokból, valamint nagy energiájú részecskékből, főként protonokból (99 %) áll.
- Kozmogén radionuklidokat, melyek általában a felső sztratoszférában lejátszódó neutron indukált magreakciók során keletkeznek [7, 9-11].

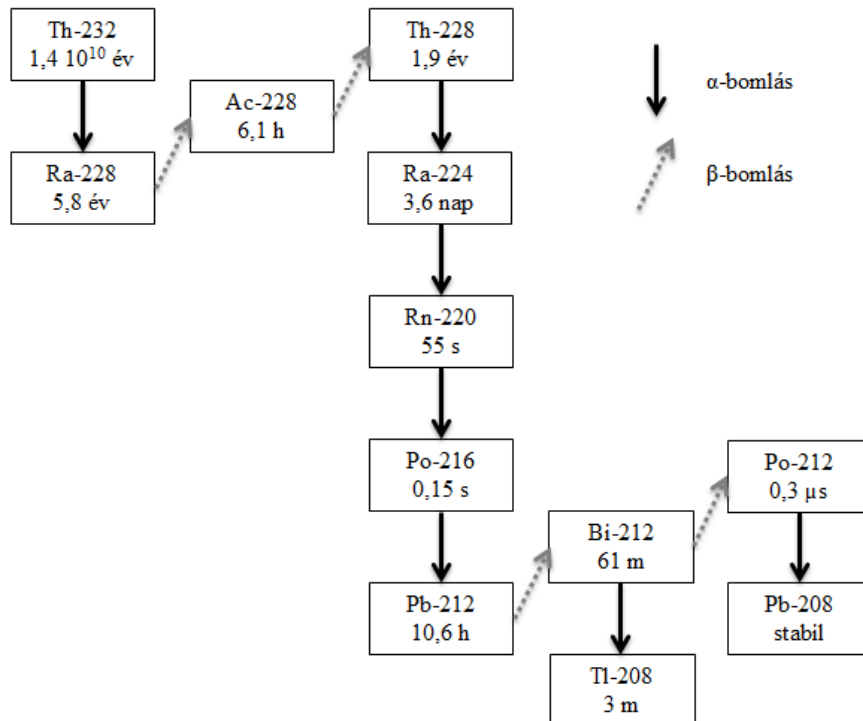
### ***II.1.1.2. Terresztriális sugárzás***

A földkérgi eredetű sugárterhelést az ún. primordiális radionuklidok okozzák, melyek a természetben mindenütt előfordulnak (nyomnyi mennyiségben megtalálhatók minden talaj és közettípusban, valamint az élőlények által felvett táplálékokban is). Ezek az izotópok a föld kialakulása óta jelen vannak, felezési idejük a föld korával összemérhető. A természetben ezen izotópok, valamint leányelemi fordulnak elő jelentős mennyiségben. Bomlásuk révén kibocsátott ionizáló sugárzásokkal hozzájárulnak az élőlények külső és belső sugárterheléséhez.

A terresztriális sugárterhelés szempontjából az U-238 és Th-232 bomlási sorok elemei, valamint a K-40 játsszák a legjelentősebb szerepet. A talajok radionuklid tartalmának világátlaga: K-40: 420 Bq kg<sup>-1</sup>, U-238: 33 Bq kg<sup>-1</sup>, Th-232: 45 Bq kg<sup>-1</sup> [7]. A Magyarországon jellemző aktivitáskoncentrációk: K-40: 370 Bq kg<sup>-1</sup>, U-238: 29 Bq kg<sup>-1</sup>, Th-232: 28 Bq kg<sup>-1</sup> [7]. A két fő bomlási sort a II.1-2. és II.1-3. ábra, a legfontosabb radionuklidok tulajdonságait pedig az II.1-1. táblázat mutatja be [12].



II.1-2. ábra: Az U-238 bomlási sora



II.1-3. ábra: A Th-232 bomlási sora

II.1-1. táblázat: A legfontosabb terreztriális radionuklidok tulajdonságai [12]

Izotóp	Felezési idő [10 <sup>9</sup> év]	Természetes előfordulás	Bomlástípus
U-238	4,47	99,27 %	alfa (4,27 MeV)
Th-232	14	100 %	alfa (4,08 MeV)
K-40	1,25	0,01 %	béta (1,31 MeV)

### Külső sugárterhelés

A földkérgi eredetű külső sugárterhelés a primordiális radionuklidok leányelemeinek gamma-sugárzásából ered. A gamma-sugárzás révén különböző dózisterek alakulnak ki, melyek nagysága függ az egyes izotópok aktivitáskoncentrációjától, azok eloszlásától, valamint az izotópokat tartalmazó mátrix anyagi minőségétől. A gamma-dózisteljesítmény nagy része a K-40, Pb-214, Bi-214, Tl-208 és Ac-228 izotópoktól származik. A szabadtéri gamma-dózisteljesítmény világszerte: 59 nGy h<sup>-1</sup> [7].

Primordiális radionuklidok az építőanyagokban is megtalálhatók, mivel azok általában a természetben megtalálható anyagokból készülnek. A lakóépületekben mért gamma-dózisteljesítmény népszámmal súlyozott világszerte 84 nGy h<sup>-1</sup> [7], amely függ az építkezési szokásoktól és a felhasznált anyagoktól. A legmagasabb értékek azokban az országokban adódtak, ahol nagy mennyiségben alkalmaznak kő alapú, vagy más, nagy mennyiségben használt falazati anyagot (gránit, bazalt, téglák, agyag, föld). Ezek: Magyarország, Malajzia, Kína, Olaszország, Spanyolország stb. Magyarországon a jellemző dózisteljesítmény 70 – 110 nGy h<sup>-1</sup> közé tehető [13].

### Belső sugárterhelés

Radionuklidok belégzés, lenyelés útján a szervezetbe kerülhetnek. Belégzés szempontjából a radonizotópok és leányelemei okozta sugárterhelés a meghatározó. A természetes eredetű sugárterhelés kb. fele a radon és leányelemei okozta belső sugárterheléstől származik (járuléka: 1,26 mSv év<sup>-1</sup>). A kiülepedett szilárd részecskék a táplálkozás útján is a szervezetbe kerülhetnek, és a véráramon keresztül a szervezet távolabbi pontjaira is eljuthatnak, ezáltal belső sugárterhelést okoznak [14].

## II.1.2. Mesterséges eredetű sugárterhelés

Mesterséges eredetű sugárterhelésről a mesterséges izotópok megjelenésétől beszélhetünk. A kísérleti, kutatási, hadi- és nukleáris ipari, gyógyászati folyamatok során keletkező és felhasznált anyagok kikerülnek a természetbe, és bekerülnek a természetes körfolyamatokba, valamint a keletkezés és felhasználás helyétől, idejétől, módjától, valamint az izotópok minőségétől és kémiai formájától függően részt vesznek a biokémiai folyamatokban.

## II.2. A radon és a toron

### II.2.1. A radon izotópjai

A radon a periódusos rendszer VIII. főcsoportjának 6. eleme. Felfedezése Ernest Rutherford és Frederic Soddy nevéhez fűződik (1900). Színtelen, szagtalan radioaktív nemesgáz. A levegőnél kb. kilencszer nehezebb ( $9,74 \text{ kg m}^{-3}$ ), vízben és egyes szerves oldószerekben oldódik. Szilárd és cseppfolyós állapotban radioaktivitása miatt sárga (fagypontja alá hűtve narancs) színnel foszforeszkál.

Stabil izotópjja nincs, 27 radioaktív izotópjja van [15], melyek közül a legjelentősebbek az U-238, Th-232 és U-235 bomlási sorokba tartozó Rn-222, Rn-220 és Rn-219 izotópok, melyek tulajdonságait a II.2-1. táblázat tartalmazza. Mindhárom izotóp Ra izotópból keletkezik, majd alfa-bomlással tovább bomlik, míg végül a bomlási sor végén stabil Pb izotóppá alakul.

II.2-1. táblázat: A radon legjelentősebb izotópjainak főbb jellemzői

Bomlási sor	U-238	Th-232	U-235
Anyaelem	Ra-226	Ra-224	Ra-223
Anyaelem felezési ideje	1602 év	3,64 nap	11,4 nap
Radon izotóp	Rn-222	Rn-220	Rn-219
Radon izotóp felezési ideje	3,824 nap	55,6 s	3,9 s
Stabil végmag	Pb-206	Pb-208	Pb-207

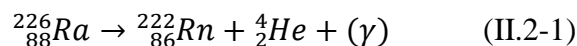


A radonizotópok bomlása során polónium, ólom, bizmut és tallium izotópok keletkeznek, melyek alfa-részecskéket, elektronokat és gamma-sugárzást bocsátanak ki.

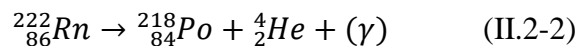
Élettani hatását tekintve a Rn-222 izotóp (radon) a legjelentősebb, viszonylag hosszú felezési ideje miatt, azonban az utóbbi időben a Rn-220 izotóp (toron) is egyre nagyobb figyelmet kap. A Rn-219 izotóp (aktinon) hatása elhanyagolható, egyrészt a nagyon rövid felezési ideje (3,9 s), másrészt anyaeleme, az U-235 alacsony természetes izotóparánya (kb. 0,7 %) miatt.

### **II.2.1.1. Radon (Rn-222)**

Szűkebb értelemben véve a radon 222-es tömegszámú izotópját nevezzük radonnak. A Rn-222 az U-238 bomlási sorába tartozik. Anyaeleme a Ra-226, melyből alfa-bomlással keletkezik a következő egyenlet szerint:



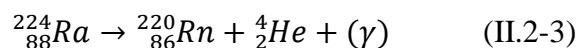
Alfa-bomlással Po-218 izotóppá alakul az alábbi módon:



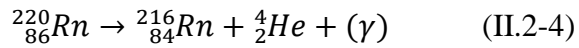
Felezési ideje 3,82 nap, amely elég hosszú ahhoz, hogy a kőzetekből és az építőanyagokból kidiffundáljon és a belső terekben feldúsuljon, de elég rövid ahhoz, hogy bomlása közvetlenül is kifejtse egészségkárosító hatását, ezért sugárvédelmi szempontból a legjelentősebb radonizotóp.

### **II.2.1.2. Toron (Rn-220)**

A radon 220-as tömegszámú izotópját toronnak nevezzük. A Th-232 bomlási sorába tartozik (innen ered a „toron” név). Anyaeleme a Ra-224, melyből alfa-bomlással keletkezik a következők szerint:



Alfa-bomlással Po-216 izotóppá alakul az alábbi módon:



Viszonylag rövid felezési ideje (55,6 s) miatt csak a felsőbb rétegekből képes kijutni, ezért általában csak kisebb mértékben járul hozzá a sugárterheléshez (csak nagy Th-tartalmú talajok/építőanyagok esetén lehet jelentős) [16], viszont sugárterhelés szempontjából a leányelemi hatásával számolnunk kell. A toron hatása mérés technikai szempontból sem elhanyagolható, mivel a radonmérő műszereket zavarhatja a toron jelenléte (pl. talajgázmérésnél akár 10-30 % hibát is okozhat).

### **II.2.2. A radon/toron és leányelemeinek egészségügyi hatásai**

Mint az már korábban látható volt, a természetes sugárterhelés 52 %-a a radon izotópjaitól és azok leányelemeitől származik. Ezen belül 44 % tulajdonítható a radonnak és leányelemeinek, míg 8 % a toron és leányelemei részaránya [17]. Mivel ezek alfa-sugárzó izotópok, főként a belső sugárterhelés szempontjából jelentősek. Elsősorban inhalációval kerülnek a szervezetbe (a radon okozta inhalációs dózis 87 %-a a radontól, 13 %-a a torontól származik). A belélegzett gáznak a nagy részét kilélegezzük, csupán 1-2 %-a képes a véráramba bekerülni, majd a test távolabbi pontjaira eljutni. Ebben az esetben (apoláris tulajdonsága miatt) a zsírszövetben rakódik le, az ott keletkező leányelemei hosszabb távon is kifejtik egészségkárosító hatásukat [18].

A nagyobb problémát a leányelemek okozzák. Ezek szilárd részecskék, melyek a levegő aeroszoljához tapadva képesek bejutni a tüdőbe, és ott különböző helyeken (elsősorban a hörgők elágazásaiban) lerakódnak és nagyenergiájú alfa-részecskékkel bombázzák a tüdő érzékeny osztódó hámsejtjeit [17, 19, 20]. Mivel az aeroszol részecskék száma és méreteloszlása jelentősen befolyásolja a bomlástermékek viselkedését, a dohányzás megnöveli azok inhalációjából származó egészségügyi kockázatot [21-23].

A BIER VI jelentés két kockázati modellt ajánl a dohányzástól és a radon bomlástermékeiktől származó kombinált hatás számítására, és felsorolja a becsült kockázatot a dohányosok és a nem dohányosok egész életen át tartó besugárzása esetén, mindkét nemre. Chen 2005-ös tanulmányában gyakorlati használatra alkalmas táblázatokat ad a relatív kockázatra minden kétéves időszakra 0 – 110 év között, 100 –

1000 Bq m<sup>-3</sup> között változó radonkoncentrációjú lakások esetén [24]. A számítások az Amerikai Környezetvédelmi Ügynökség (U. S. Environmental Protection Agency – EPA) által fejlesztett modellen alapulnak. A részletes táblázatok tisztább rálátást adnak a magasabb kockázatú korcsoportokra és az expozíció időtartamának hatására.

Nikezic és munkatársai 2010-es tanulmányukban a toron bomlástermékeiktől származó, az emberi tüdőre vonatkozó, egységnyi expozíció által okozott dózist és a dóziskonverziós faktort határozták meg [25]. Feltárták a dóziskonverziós faktor különféle környezeti és egyéb paraméterektől való függését. A számításokhoz használt modellek az ICRP 66 ajánlason alapultak. Ezután az emberi tüdőt béta- és gammasugárzás forrásának tekintve meghatározták a többi szervre vonatkozó dóziskonverziós faktor értékét, amely toron esetén nagyobbak adódtak, mint radon esetében, ami a toron bomlástermékei hosszabb felezési idejének a következménye. Fontos megjegyezni, hogy a tüdő után – ahol a sugárforrás elhelyezkedett – az izomszövet kapta a legnagyobb dózist.

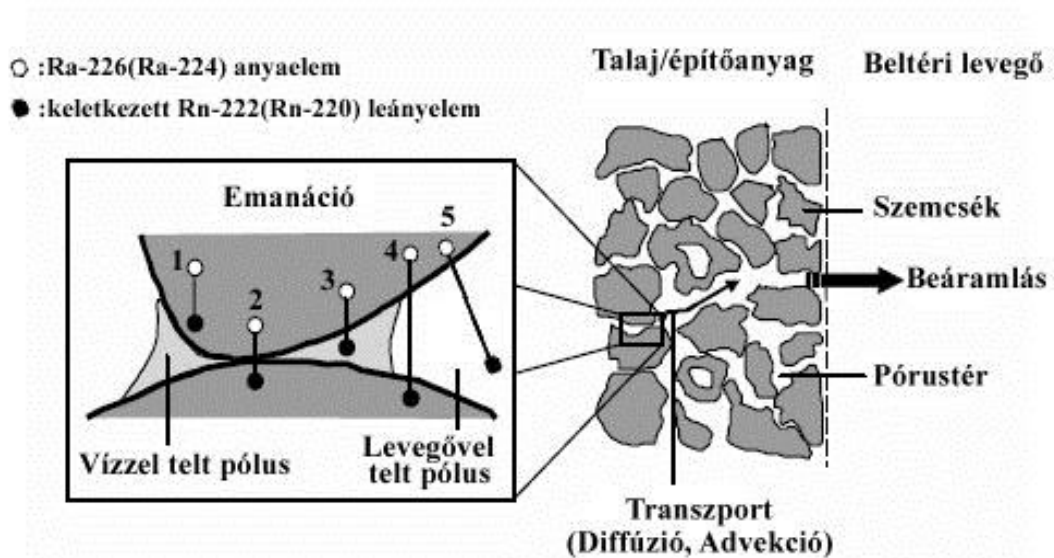
Meisenberg 2011-es tanulmánya egy átfogó képet ad a toron és bomlástermékei jelenlétének beltéri körülményekre gyakorolt hatásáról [26]. A méréseket kísérleti szobákban, valamint kínai és indiai vályogházakban végezték. Még az átlagos Th-232 koncentrációjú vályog is jelentős toronforrásnak bizonyult. A bomlástermékek térbeli eloszlása homogénnek bizonyult, ellentétben a torongázéval. A tapadt és nem tapadt Pb-212 bomlástermék kiemelkedő hányaddal járult hozzá az expozícióhoz. Megerősítést nyert a levegőcseréből és az aeroszolkoncentrációból elméletileg számolt hatás. Meghatározták a modell átadási koefficienseit. Ezekkel az átadási koefficiensekkel, a toron modell alapján számolt éves dózis majdnem 2 mSv a tradicionális kínai és indiai vályogházakban, amely bizonyítja a toron potenciális egészségügyi hatását.

### **II.2.3. A radon/toron migrációs folyamatai**

#### ***II.2.3.1. Emanáció***

A radon talajszemcséből történő kijutása a Szilárd-Chalmers effektus révén lehetséges: Ra bomlása során keletkező Rn atommag az impulzusmegmaradás miatt 86,24 keV energiával meglöködik, ez elegendő ahhoz, hogy az atommag szilárd anyagban 20 – 70 nm, vízben kb. 0,1 µm, levegőben kb. 0,06 mm távolságot tegyen

[27]. Amennyiben a bomlás pillanatában a keletkező Rn atommag ennél kisebb távolságra helyezkedik el a szemcse felületétől, az képes a szilárd szemcséből a pórustérbe kilökődni, ellenkező esetben a szemcsén belül marad. Amennyiben a radon atommag kijutott a pórustérbe, ott az adott körülmények függvényében (pórustér víztartalma, szomszédos szemcse távolsága) lelassulhat, vagy egy szomszédos szemcsébe becsapódhat [28]. Ezeket a folyamatokat szemlélteti a II.2-1. ábra [29].



II.2-1. ábra: Rn atommag kijutása a talajszemcséből [29]

Az a folyamat, amely során a Ra anyaelemből keletkező Rn atom kijut a kő-, talaj- vagy építőanyag szemcséből a pórustérbe, emanációnak nevezzük [30]. A pórustérbe kijutott, valamint az összes keletkező Rn atom mennyiségének hányadosát emanációs tényezőnek nevezzük [31]. Az összes keletkező radonatom mennyisége egyensúlyi állapotban megegyezik a Ra mennyiségével:

$$\varepsilon = \frac{\text{pórustérbe kijutott Rn}}{\text{szemcsében keletkezett Rn}} = \frac{A_{Rn}}{A_{Ra}} \quad (\text{II.2-5})$$

ahol  $\varepsilon$  az emanációs tényező,  $A_{Rn}$  a radon aktivitása a pórustérben (Bq);  $A_{Ra}$  a rádium aktivitása a mintában (Bq).

Kísérletek alapján az emanációs tényező értéke építőanyag esetén 0,2 – 30 % radonra, míg toronra 0,2 – 6 %. A legkisebb értékek a magas hőmérsékleten hőkezelt építőanyagok (pl. téglá) esetében tapasztalhatók [30, 32].

Az emanálódott radon mennyisége a Ra anyaelem aktivitáskonzentrációjától, és az emanációs tényezőtől függ. Ennek a két tényezőnek a szorzatát radonpotenciálnak nevezzük [33]:

$$\Omega = \varepsilon \cdot C_{Ra} \quad (\text{II.2-6})$$

ahol  $\Omega$  a radonpotenciál ( $\text{Bq kg}^{-1}$ );  $\varepsilon$  az emanációs tényező;  $C_{Ra}$  a rádium aktivitáskonzentrációja a mintában ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ).

### **II.2.3.2. Exhaláció**

Az exhaláció az a folyamat, amely során az emanálódott Rn atom kijut a pórustérből a környezetbe. Exhaláció alatt általában az egységnyi felületen, egységnyi idő alatt kiáramló aktivitást értik ( $\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ), de megadhatják tömegegységre vonatkoztatva is ( $\text{Bq kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ):

$$E = -D \cdot \left. \frac{\partial C_{Rn}}{\partial x} \right|_{x=0} \quad (\text{II.2-7})$$

ahol E az exhaláció ( $\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ); D a diffúziós tényező ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ );  $C_{Rn}$  a radon aktivitáskonzentrációja a pórustérben ( $\text{Bq m}^{-3}$ ).

Definiálható az exhalációs tényező is, ami az exhalálódott és az emanálódott radonmennyiség hányadosát jelenti. Minél kisebb a mintavastagság, ez az érték annál inkább közelít a 100 %-hoz. Azt a jelenséget, amikor az emanálódott és az exhalálódott radonmennyiség megegyezik, szabadexhalációnak nevezzük. Az a mintavastagság, ahonnan az összes emanálódott radonatom képes kijutni a mintából, a két radonizotóp eltérő felezési ideje miatt jelentősen eltérő. Azt a rétegvastagságot, amely jellemzi a radon anyagból történő kijutását diffúziós mechanizmussal, diffúziós úthossznak, vagy diffúziós rétegvastagságnak nevezzük:

$$l_0 = \sqrt{\frac{D}{\lambda_{Rn}}} \quad (\text{II.2-8})$$

ahol  $l_0$  a diffúziós rétegvastagság (m); D a diffúziós tényező ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ );  $\lambda_{Rn}$  a radon bomlási állandója ( $\text{s}^{-1}$ ).

A diffúziós úthossz anyagi minőség függő, és döntően meghatározza az anyagból exhalálódó radon mennyiségét [34]. Egydimenziós transzportot, állandó homogén eloszlású diffúziós tényezőt és áramlásmentes viszonyokat feltételezve az exhaláció a következőképpen számolható [33]:

$$E = \varepsilon \cdot C_{Ra} \cdot \rho \cdot \lambda_{Rn} \cdot l_0 \cdot tgh\left(\frac{z_0}{l_0}\right) \quad (\text{II.2-9})$$

ahol E az exhaláció ( $\text{Bq m}^2 \text{ s}^{-1}$ );  $\varepsilon$  az emanációs tényező;  $C_{Ra}$  a minta rádiumkoncentrációja ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ),  $\rho$  a minta sűrűsége ( $\text{kg m}^{-3}$ ),  $\lambda_{Rn}$  a radon bomlási állandója ( $\text{s}^{-1}$ ),  $l_0$  a diffúziós rétegvastagság (m),  $z_0$  a minta rétegvastagsága (m).

Ha a minta vastagsága jelentősen kisebb a diffúziós úthossznál, akkor az összes emanálódott radon képes az anyagból kijutni. Ezt a jelenséget szabadexhalációnak nevezzük, és akkor feltételezhető ha a minta vastagsága a diffúziós úthossz 1-2 %-a, mivel ilyen mélységből képes a radon úgy kijutni az anyagból, hogy a kijutás közbeni bomlás nem befolyásolja jelentős mértékben az exhalálódó radon mennyiségét a kidiffundáláshoz szükséges időtartam alatt [35]. Ilyen esetben az exhaláció csak a minta tömegétől és a radonpotenciáltól függ, ezért célszerű a tömegegységre vonatkoztatott fajlagos exhalációt megadni.

### ***II.2.3.3. Az emanációt és exhalációt befolyásoló tényezők***

A rádiumtartalomtól kívül számos egyéb paraméter is befolyásolja az emanáció és az exhaláció mértékét. Ezek közül a két legfontosabb a szemcseméret-eloszlás és a minta nedvességtartalma.

A szemcsék nagysága és geometriája is befolyásolja az emanációt, ezért a porozitás mellett a fajlagos felület is jelentős szerepet játszik a folyamatban [36], valamint a szemcséken belüli összetétel változásból adódó sűrűség és Ra-226 eloszlás változás is hatással van. A szemcseméret-eloszlás meghatározza azt a fajlagos felületet, melyen keresztül a radon képes emanációval kijutni. Ezen kívül a szemcseméret-eloszlás befolyásolja az anyag permeabilitását, és ezáltal az exhalációt (permeabilitás csökkenésével csökken az exhaláció).

Jelentősen befolyásolja még az emanációt a nedvességtartalom, mivel a pórúsvízben lefékeződött radonatomok miatt az emanáció megnő (akár 30 – 70 % értéket is elérhet)

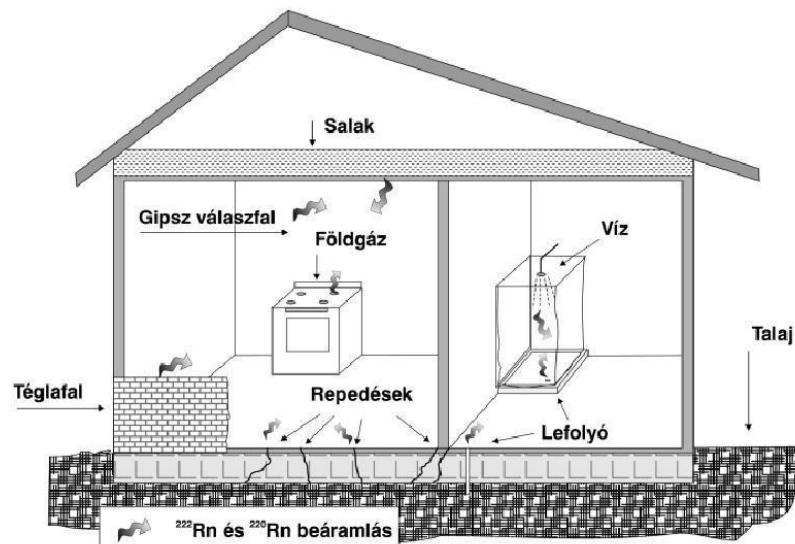
[30, 34, 37-39]. A nedvességtartalom hatása elsősorban abból adódik, hogy a radonatom visszalökődési úthossza három nagyságrenddel nagyobb levegőben, mint vízben, ezért ha kis mennyiségű víz van a szemcse felületén, az az emanáció szempontjából kedvező, mivel abban a radonatom lefékeződik, és így nem csapódik bele egy szomszédos szemcsébe. Másrészt viszont, ha a pórusok vízzel telítettek, az emanálódott radonatom kijutása a pórusból bonyolultabb. Ebben az esetben az emanálódott radon beoldódik a pórusvízbe, és mivel a diffúziós úthossz sokkal kisebb vízben, mint levegőben, ezért az exhaláció gátolva van. Kísérletek alapján 8 % nedvességtartalomig az exhaláció kis mértékben emelkedik, e fölött viszont csökkenő tendenciát mutat [40]. A vízzel telt pórusok egyrészt növelik az emanálódott radon mennyiségét, másrészt viszont csökkentik a diffúziós mélységet [34, 41]. Porózus anyagoknál ez akár elhanyagolható is lehet, viszont egyes esetekben jelentősen csökkenhet az exhaláció a víztartalom hatására.

#### **II.2.4. A radon/toron beltéri feldúsulása**

A beltéri radonkoncentráció forrásai:

- építőanyag;
- épület alatti közet és altalaj;
- csapvízben oldott radon;
- földgáz;
- épületen kívüli levegő.

A radon épületbe jutását a II.2-2. ábra mutatja be [8].



II.2-2. ábra: A radon épületbe jutásának lehetséges útvonalai [8]

Az építőanyagok közül a legjelentősebb forrás az altaljból történő feláramlás [42, 43]. Talajtípustól függően 1 – 3 m mélységből, repedezett talajok esetén akár 10 m mélyről is képes a radon feláramlani [44]. Ezt a folyamatot a környezeti tényezők változásából adódó nyomáskülönbségek is befolyásolják. A talajvíz mennyisége is befolyásolhatja a feláramlást, egyrészt gátolja az exhalációt, másrészt a talajvízszint változás a talajlevegőre pumpáló hatást fejt ki, és ez is befolyásolja az exhaláció mértékét [45].

A vezetékes víz radontartalma melegítés, főzés, fürdés, zuhanyzás révén bekerülhet a beltéri levegőbe [46].

A földgáz radontartalma a tároló közet minőségétől függ, lakossági felhasználás során kerülhet a beltéri levegőbe [47].

Az épületen kívüli levegő radonkoncentrációja általában alacsony, a beltéri radonkoncentrációra gyakorolt hatása elhanyagolható [48].

A beltéri radonkoncentrációt az épület légcseréje és a szellőztetés mértéke nagymértékben befolyásolja. Az új építésű lakások esetén energiatakarékossági okok miatt a jó szigetelésre, ezáltal az alacsony légcseréje tényezőre törekedtek, ami a beltéri radonkoncentráció szempontjából kedvezőtlen, akár két nagyságrend növekedést is okozhat. A radonmentesítési eljárások egyik hatékony eszköze a légcseréje tényező növelése különféle műszaki megoldások alkalmazásával [49-52].

A radon beltéri eloszlása általában homogén, míg a toron a rövid felezési ideje miatt nem tud homogénen eloszlani, hanem a forrás (pl. falak) közelében feldúsul, viszont a



bomlástermékei már homogén eloszlást mutatnak [53]. A szilárd bomlástermékek egy része keletkezésük után szabadon marad (nem tapadt frakció) vagy kis részecskéket (klasztereket) alkot, míg más részük a légköri aeroszolhoz tapad (tapadt frakció) [30]. A beltéri környezetben az aeroszol részecskék falakra és bútorokra történő kiülepedését is figyelembe kell venni.

Az épületek leányelem-koncentrációjának jellemzésére a következő mennyiségek a használatosak:

- Potenciális alfa-energia koncentráció (PAEC): a radon/toron bomlástermékei által kibocsátott alfa-energiák összege a bomlási sor végén található stabil ólomizotóp keletkezéséig (radon esetén ez 19,2 MeV, míg toron esetén 20,9 MeV).
- Egyensúlyi ekvivalens koncentráció (EEC): egy nem egyensúlyi összetételű keverék jellemzésére használatos. Azon egyensúlyi összetételű elegy aktivitáskoncentrációját jelenti, ami ugyanakkora potenciális alfa-energia koncentrációval rendelkezik, mint az aktuális, nem egyensúlyi összetételű elegy.
- Egyensúlyi faktor: az egyensúlyi ekvivalens koncentráció és az aktuális radon/toron koncentráció hányadosa, az egyensúlyi összetételtől való eltérést adja meg. Radon esetében a jellemző értéke 0,4 [17], toron esetében 0,04 [54]. (Toron esetében nagy az átlagtól való standard eltérés, így az egyensúlyi faktor széles határok között változhat.)

Általában toron csak akkor van jelen a beltéri levegőben jelentősebb mennyiségben, ha az anyaelemét a belső légtérrel érintkező szerkezeti anyag megemelkedett koncentrációban tartalmazza. A toron rövid felezési ideje miatt talajból a belső terekbe történő transzport és diffúzió az alapon keresztül nem jelentős. A toron és bomlástermékeinek felezési ideje közti különbség miatt gyakran jelentős különbség tapasztalható a gáz és a bomlástermékei térbeli eloszlása között, és ez megnehezíti a toron egyensúlyi koncentrációjának meghatározását [55].

#### **II.2.4.1. A beltéri radonkoncentrációra vonatkozó szabályozás**

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség IBSS 1996-os ajánlása a munkahelyekre  $1000 \text{ Bq m}^{-3}$ , míg lakásokra  $200 - 600 \text{ Bq m}^{-3}$  radon referencia szintet állapított meg [56].

Az EU BSS ajánlás előírja azon munkahelyek azonosítását, ahol jelentősebb természetes eredetű sugárterhelés várható. Radonra vonatkozó cselekvési szintet nem, viszont munkahelyekre  $500 - 1000 \text{ Bq m}^{-3}$ , meglévő lakásokra  $300 \text{ Bq m}^{-3}$ , új lakásokra pedig  $200 \text{ Bq m}^{-3}$  referencia szintet határoz meg [57].

A WHO 2009-es ajánlása a beltéri radonkoncentráció éves átlagára új épületek esetén  $100 \text{ Bq m}^{-3}$ , míg a meglévőkénél  $300 \text{ Bq m}^{-3}$  vonatkoztatási szintet határoz meg [48].

A legfrissebb nemzetközi ajánlást a beltéri radonkoncentrációra a 2014-es IAEA GSR Part 3 kiadványban fogalmazták meg. Ez  $300 \text{ Bq m}^{-3}$  radonszintet határoz meg mind lakásokra, mind munkahelyekre, valamint előírja nemzeti akciótervek készítését a radonkoncentráció csökkentésére [58]. A magyar szabályozásba a NAÜ kiadvány ajánlásai kerültek átvezetésre.

Toronra nincs ezekhez hasonló vonatkoztatási szint definiálva.

Az egyes országok maguk döntenek el, hogy melyik ajánlást alkalmazzák. Magyarországon 2015-ig nem szerepelt ajánlás a lakóépületek beltéri radonkoncentrációjára, azonban a 2016. január 1-én hatályba lépett új sugárvédelmi alaprendelet, a 487/2015. (XII. 30.) Korm. rendelet az ionizáló sugárzás elleni védelemről és a kapcsolódó engedélyezési, jelentési és ellenőrzési rendszerről – az IAEA GSR Part 3 alapján –  $300 \text{ Bq m}^{-3}$  vonatkoztatási szintet határoz meg lakó- és középületekre, valamint munkahelyekre egyaránt. Ezen kívül előírja a radon és leányelemei okozta egészségügyi kockázat mérséklésére irányuló nemzeti cselekvési terv elkészítését [59]. A különböző ajánlásokat a II.2-2. táblázat foglalja össze [48, 56, 58-63].

II.2-2. táblázat: A radonra vonatkozó nemzetközi ajánlások [48, 56, 58-63]

Ajánló szervezet/dokumentum	Ajánlás éve	Radon referencia szint [Bq m <sup>-3</sup> ]	
		Munkahely	Lakások
EPA	1993	4 pCi/l = 148 Bq/m <sup>3</sup>	
ICRP 65	1993	500 – 1500	200 – 600
IAEA SS 115	1996	1000	200 – 600
BSS	1996	500 – 1000	200 – 400
ICRP 103	2007		600
UK HPA	2009	1000	100
ICRP 109, UNSCEAR	2009		300
WHO	2009		100
IAEA GSR Part 3	2014	300	300
<b>487/2015. (XII. 30.) Korm. r.</b>	<b>2015</b>	<b>300</b>	<b>300</b>

#### II.2.4.2. Beltéri radon/toron felmérések

A hosszú távú, akár több évig tartó, kiterjedt, több száz mérési pontot magába foglaló felmérések során integrális mérőeszközöket, elsősorban szilárdtest-nyomdetektorokat alkalmaznak. Ezek előnye, hogy olcsók, alkalmazásuk egyszerű, nagyszámú egyidejű mérést tesz lehetővé. Hátrányuk a viszonylag bonyolult kiértékelési eljárás és a nagyobb mérési bizonytalanság.

#### Nemzetközi felmérések

A korábbi felmérések főként a beltéri radonkoncentráció lakásokban és munkahelyeken történő meghatározására fókuszáltak. Dániában 1985-86-ban 500, majd 10 évvel később 3000 lakóépületben mérték a radonkoncentrációt, majd az eredmények alapján egy modellt készítettek a beltéri radonkoncentrációra [64]. Mexikóban több mint 500 munkahelyen határozták meg a beltéri radonszintet, és azt vették észre, hogy munkahelyek esetében sokszor jóval alacsonyabb radonszintek alakulnak ki, mint lakóépületekben. Ennek oka a feltételezések szerint a munkahelyeken működő szellőző és klimatizáló rendszerek, amik a lakóépületek esetében kevésbé elterjedtek [65].

Ezekon kívül számos hasonló jellegű felmérést végeztek Kínában [66], Brazíliában [67], Ausztráliában [68] és Olaszországban [69].

Korábban a toron jelenlétét számottevő mértékben Ázsia-specifikus problémának gondolták, mivel elsőként az ázsiai országokban (India [70-72], Kína [73, 74], Korea [75], Japán [76]) végeztek egyidejű radon-toron felméréseket. Az utóbbi 10-15 évben végeznek Európában (Svédország [77], balkáni országok [78], Magyarország [79-81]) is beltéri toronméréseket, valamint számos esetben a leányelemek mérésére is történtek kísérletek [82-84].

Chung és társai 1998-ban egy előzetes tanulmányt készítettek az atmoszférikus radon- és toronkoncentrációk, valamint a talajgáz-koncentrációk meghatározására Dél-Koreában [85]. Az atmoszférikus radon és toron méréseket egy diszkriminatív radon/toron monitorral végezték, melyben detektorként polikarbonát filmet alkalmaztak. A talajgáz mérésekhez CR-39 detektoros talajgáz monitort használtak. Hat dél-koreai városban végeztek méréseket egy éven keresztül. A detektorokat 2-3 havonta cserélték a megfigyelési időszak alatt a koncentrációk szezonális változásainak megfigyelése céljából. A korlátozott számú adat alapján a kültéri radonkoncentrációk némileg magasabbnak tűntek az UNSCEAR jelentés tipikus értékeinél.

Guo és munkatársai Kína négy területén végeztek méréseket 2001-ben [86]. A felmérés során néhány lakásban magas toronkoncentrációkat mértek.

Mishra és munkatársai radon és toron hosszú idejű (1997 – 2000) passzív monitorozását végezte a beltéri környezetben, Shillongban, Indiában [87]. A munka célja egy beltéri radon és toron térkép készítése volt India észak-keleti régiójáról, amely egy értékes adatbázist szolgáltathat minden radon és toron anomáliákkal foglalkozó tanulmány számára.

Tokonami és munkatársai a kínai löszfennsík barlanglakásaiban végeztek méréseket [88]. A lakások a Shanxi és a Shaanxi tartományokban találhatóak. A radon és toron gázkoncentrációkat mérték passzív integráló diszkriminatív radon-toron monitorral. A toron bomlástermékeinek koncentrációját becsléssel határozták meg. Egy detektort helyeztek a lakás közepére 6 hónapra, majd ezt egy újjal helyettesítették újabb 6 hónapra. A méréseket 202 lakásban végezték 2001 augusztusa és 2002 augusztusa között. Gamma-dózismérést végeztek mind beltéren, mind kültéren egy hordozható elektronikus doziméterrel. A talaj radioaktivitását HPGe detektorral végzett gamma-spektrometriás méréssel határozták meg. A 193 lakásban kapott beltéri

radonkoncentrációk átlaga  $57 \text{ Bq m}^{-3}$ , míg a beltéri toronkoncentrációk átlaga  $153 \text{ Bq m}^{-3}$  volt.

Martinez és munkatársai Mexikóváros nagyvárosi zónájában, 50 lakásban végeztek méréseket passzív technikával, 2001 – 2002 között [89]. Az eredmények általános lognormál eloszlást mutatnak az integrált beltéri toronkoncentrációra,  $82$  és  $55 \text{ Bq m}^{-3}$  éves számtani és mértani középértékkel. A szezonális változások alapján az átlagos értékek minimuma nyáron tapasztalható, ahol 35 %-kal kisebb az érték, mint ősszel.

Vaupotic és társai radont és toront mértek 15 nyilvános épület és 10 lakás beltéri levegőjében, Szlovéniában, 2004 novemberében, diszkriminatív monitorral [90]. A torontól és a radontól származó dózisos aránya  $0,07 - 0,47$  volt.

Az Amerikai Nemzeti Rákkutató Intézet és a Kínai Egészségügyi Minisztérium egy vizsgálata alkalmával nyomdetektor alapú monitorokat használtak a beltéri radonkoncentráció meghatározására Gansuban, Kínában, mely során a toron zavaró hatása miatt a radonszinteket bizonyítottan túlbecsülték. Ezért Shang és csapata 2008-ban továbbfejlesztette az előző felmérés során használt detektort [91]. Az új detektor képes volt a két izotóp szétválasztására a radonmérés megzavarása nélkül. Az új detektorral egy féléves vizsgálatot végeztek 49 tradicionális lakásban Gansu falujában. A számtani és mértani középértékek radonra  $120$  és  $150 \text{ Bq m}^{-3}$ , toronra  $430$  és  $350 \text{ Bq m}^{-3}$ . A magas toronkoncentrációk bizonyítják a toronfrakció jelentőségét a vizsgált területen. A jelenlegi beltéri radonszintek kb. háromszor kisebbnek adódtak, mint a korábbi, toron által befolyásolt esetben.

Chen és társai 2009-ben radon- és toronméréseket végeztek Winnipegben, Kanadában, mely során 117 diszkriminatív detektort helyeztek el a házakban 3 hónapra [92]. Az eredmények alapján a toron detektálható szinten volt jelen kb. a házak felében, és a radon szignifikánsan az országos átlag fölött volt. A radonkoncentrációk átlaga  $112 \text{ Bq m}^{-3}$  volt. A becslések szerint a winniepegi házak 20 %-ának radonkoncentrációja a kanadai beltéri radon irányelv szerinti  $200 \text{ Bq m}^{-3}$ -es érték felett van. Ez a következtetés megegyezik a 20 évvel korábbi becslés eredményével. A toronkoncentráció 60 ház esetén a kimutatási határ alatt volt. A mért toronkoncentrációk átlaga  $21 \text{ Bq m}^{-3}$  volt.

A nemzetközi felmérések eredményei alapján látszik, hogy néhány helyen a toron jelentős mértékben jelen van a beltéri levegőben, így hatása nem elhanyagolható a pontos radonmérések esetén, valamint hogy különleges figyelmet kell fordítani a toronra és bomlástermékeire a dózisszámítás során is.

## Magyarországi felmérések

A toronprobléma megjelenése óta számos törekvés történt a magyarországi lakások és munkahelyek toronszintjének felmérésére. 2007-ben a Pannon Egyetem és a japán National Institute of Radiological Sciences (NIRS) kutatóintézet együttműködésében párhuzamos radon/toron méréseket végeztek magyarországi lakásokban és földalatti munkahelyeken [80]. A mérések során a NIRS által kifejlesztett detektorokat használták. Az eredmények hely és időfüggést mutattak a mért koncentrációértékekben.

Egy másik magyarországi felmérés során magyar fejlesztésű Radopot és Raduet (Radosys Kft., Magyarország) monitorokat használtak [79]. A méréseket 2003 és 2008 között végezték lakásokban és munkahelyeken. Lakásokban minden esetben kb.  $100 \text{ Bq m}^{-3}$  toronkoncentrációt mértek, viszont a lakások pincéiben kb.  $200 \text{ Bq m}^{-3}$  volt a tipikus érték. A vizsgált bauxit és mangán bányában  $200 - 500 \text{ Bq m}^{-3}$  toronkoncentrációt mértek, míg barlangok esetén ez  $1000 \text{ Bq m}^{-3}$  volt. Számos esetben a toron és radon koncentráció arány  $0,25$  fölötti volt, és a toron és bomlástermékeinek dóziszjáruléka nem volt elhanyagolható.

Szintén Raduet típusú detektorokat használtak abban a felmérésben, melyet egy felhagyott magyarországi uránbánya közelében fekvő településen végeztek [93]. A felmérés során 35 egyszintes téglalakást vizsgáltak. Az eredmények alapján megállapították, hogy a radonkoncentrációk általában magasabbak a hasonló típusú épületekre jellemző értéknél, valamint számos esetben a mért toronkoncentráció sem bizonyult elhanyagolhatónak.

### II.3. Radon/toron mérési módszerek

Radon/toron mérés történhet közvetlen módon, vagy azok leányelemein keresztül történő detektálás révén (alfa-, béta- vagy gamma-sugárzás mérése). A megfelelő mérési módszer kiválasztása az adott körülményektől függ. Nagyszámú, hosszú idejű mérések esetén integráló módszereket alkalmaznak. Ha a dinamikus változó paraméterek vizsgálatára is szükség van, radon/toron monitorokat célszerű használni, melyek a koncentráción kívül számos egyéb paraméter (hőmérséklet, páratartalom stb.) változását is képesek rögzíteni [94, 95].

## **II.3.1. Passzív mérési technikák**

### ***II.3.1.1. A szilárdtest nyomdetektorok működési elve***

A szilárdtest nyomdetektorok nagy energiájú, elsősorban alfa-részecskék detektálására alkalmas eszközök. Ezek integráló típusú detektorok, tehát hosszabb időszakon keresztül, folyamatosan regisztrálják a beérkező részecskéket. Működési elvük egyszerű fizikai folyamatokon alapszik. A nagy energiájú részecskék a detektor anyagában szerkezeti változásokat, rácshibákat (nyomokat) idéznek elő, melyeket a mérési periódust követően kémiai eljárással (maratással) láthatóvá tesznek. A maratószer általában valamilyen lúg (KOH vagy NaOH), ami roncsolja a detektor felületét. A maratási sebesség a hibahelyeken gyorsabb, ezért a nyomok elmélyülnek és szabad szemmel láthatóvá válnak.

Ezután következik a detektorok kiértékelése, amely általában optikai mikroszkóppal történő nyomszámlálást jelent [96], azonban a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében a közelmúltban kifejlesztésre került egy új kiértékelési eljárás, mellyel síkágys szkenner alkalmazásával történő automatizált nyomszámlálásra van lehetőség [97]. A kapott nyomszámból meghatározzák a nyomsűrűséget (felületegységre eső nyomok száma), ami arányos a detektált alfa-részecskét kibocsátó radionuklid aktivitáskoncentrációjával. Az arányossági tényezőt kalibrációs faktornak nevezzük, melynek meghatározása egy jól szabályozható, ismert aktivitású térben (kalibrációs kamrában) történik.

A detektor anyaga általában valamilyen szerves anyag (cellulóznitrát, allil-diglikol karbonát), polimer műanyag (polikarbonát) vagy kristályos anyag (üveg, kvarc), legelterjedtebben a polikarbonátból készült CR-39 típusú detektorokat alkalmazzák [98]. A detektorlapkát egy kamrában helyezik el, melynek feladata, hogy megvédje a detektort a szennyeződésektől és a sérülésektől, valamint hogy csak a mérendő radionuklid (pl. radon és leányelemei) kerüljön kapcsolatba a detektorral.

Szimultán radon-toron méréseknél speciális detektorpárokat (pl. Raduet detektor) alkalmaznak. Ezek kamrái úgy vannak kialakítva, hogy a két radonizotóp eltérő felezési ideje miatti diffúziós úthosszak különbözőségét kihasználva az egyik térrészbe csak a radon, míg a másik térrészbe mindkét izotóp képes bejutni [99].

Nyomdetektorok segítségével leányelemek mérése is megoldható. Egy leányelemmérő monitor több detektorlapkát tartalmaz, melyek speciális fóliaborítással

vannak ellátva úgy, hogy a különböző leányelemek által kibocsátott alfa-részecskék eltérő energiájuk alapján csak bizonyos detektorokhoz tudjanak eljutni [100].

### ***II.3.1.2. Passzív toronmonitor kifejlesztésére irányuló kutatások***

Számos kísérlet történt már egy olyan passzív nyomdetektoros technika kifejlesztésére, amely lehetővé teszi a radon és a toron egyidejű mérését [101]. Ezek a technikák a radonmérésre használt módszerek módosításán alapulnak [102]. A radon és toron bomlási sorában lévő izotópok eltérő felezési idejét kihasználva olyan technikákat fejlesztettek ki, melyek a különböző sorokba tartozó izotópok bomlása során keletkező impulzusok szétválogatásán alapulnak, így képesek az aktivitásokat külön meghatározni [103, 104]. Például a CEA-ALGADE személyi alfa-dozimétert kiválogatja a Po-212-től származó alfa-emissziót, amely a toron bomlástermékeinek közvetlen mérését teszi lehetővé [105].

Doi és társai 1992-ben egy szeparált radon- és toronmérésre alkalmas passzív dozimétert fejlesztettek ki [101]. A doziméter egy nagyobb és egy kisebb félgömb alakú kamrából áll. A környezeti levegő az első, nagyobb kamrába diffundál, melynek a belépő része üvegszálalás szűrővel van ellátva, ezután lép be a második, kisebb kamrába. Mindkét kamra egy 50 mm átmérőjű, 300 µm vastagságú polikarbonát filmet tartalmaz, amely alfa-detektorként funkcionál. A nagyobb kamra detektorát 3 órás kémiai, majd 3 órás elektrokémiai maratással kezelték a toron és leánytermékei által keltett nagy energiájú alfa-részecskék (2,5 – 4 MeV) nyomainak feltárása céljából. A kisebb kamra detektorfilmjét 30 perces kémiai és 3 órás elektrokémiai maratással kezelték a radontól és bomlástermékeitől származó alacsony energiájú (0,8 – 2,7 MeV) alfa-részecskék nyomainak feltárása céljából. A torongáz diffúziója a kisebb kamrába gátolva volt, így nagymértékű elválasztást értek el.

Tokonami és társai 2001-es tanulmányuk során toronérzékenységi tesztet végeztek passzív radondetektorokra [106]. A teszt elvégzéséhez először egy toronkamra-rendszert állítottak fel. A rendszer négy részből állt: besugárzó kamra, gázgenerátor, környezeti monitor és mérőeszköz. Öt típusú radondetektort vizsgáltak a kamrarendszer segítségével. Miután csatlakoztatták a besugárzó kamrát a gázgenerátorhoz, egy külső szivattyú segítségével cirkuláltatták a torongázt a rendszerben. A detektorokat néhány napig sugározták be torondús levegővel. A toron- és radonkoncentráció közötti átlagos



arány a besugárzási időszak alatt 10:1 volt. Bár a legtöbb esetben a toron jelenléte elhanyagolható, a teszt eredményei mégis rámutattak, hogy szükséges detektorok toronérzékenységének vizsgálata a passzív radonmérések során.

Zhuo és munkatársai egy egyszerű passzív monitort fejlesztettünk ki a beltéri toronkoncentrációk integrált mérésére. Eredményeiket 2002-es cikkükben prezentálták [99]. A monitor a kereskedelmi forgalomban kapható allil-diglikol-karbonát (CR-39) detektoros radonmonitor átalakításával készült. Négy lyuk hozzáadásával, és azok nagy áteresztőképességű szűrőpapírral történő lefedésével a monitor légcseréjének mértéke jelentősen megnövelhető. A nagy konverziós faktor és az alacsony kimutatási határ biztosítja a toron pontosabb és érzékenyebb méréséhez szükséges feltételeket. Továbbá további fizikai előnyei (egyszerű felépítés, kis súly, tömörség) és alacsony költsége miatt kedvezően alkalmazható nagyszámú és hosszú idejű felmérések elvégzésére.

Az ENEA radonmérő szolgálat kifejlesztett egy dózisszámító módszert, amely a toron koncentrációjának mérésén alapul, új CR-39 alapú toron- és radonmonitor kombinációjával, a faltól mért standard távolságban. A két eszköz geometriája azonos, és az eredményeik alapján optimálható a toronmérések bizonytalansága. Calamosca 2009-es cikkében bemutatja az új eszközt, valamint a kutatócsoport által kifejlesztett kalibrációs eljárást [107].

### **II.3.2. Toronmérés szcintillációs detektorokkal**

Az ún. többszöri számlálásos technikát sikeresen alkalmazták Lucas szcintillációs cellával végzett környezeti toronméréseknél. Az eljárás alkalmazását Falk 1992-es tanulmányában írja le [103]. A módszer a rövid felezési idejű Po-216 nuklid szelektív alfa-mérésén alapul. Rövid felezési ideje miatt a toron bomlásakor emittálódó alfa-részecskét rövid időn belül követi a Po-216 bomlásakor emittálódó alfa-részecske. A többszöri számlálás alkalmazásával, tehát az egymást követő alfa-bomlások közötti időintervallumok mérésével számolható a Po-216 aktivitás, és ezen keresztül a Rn-220 aktivitás. A módszer alkalmazásával  $20 \text{ Bq m}^{-3}$ -nél kisebb átlagos Rn-220 koncentráció is könnyen meghatározható a levegőben, még akkor is, ha a Rn-222 koncentráció ennek többszöröse. Alacsonyabb Rn-222 koncentráció mellett  $1 \text{ Bq m}^{-3}$ -nél kisebb Rn-220 koncentráció is kimutatható a technika alkalmazásával.

Imoto és munkatársai 1996-ban szintén a Rn-220 és Po-216 alfaimpulzusai közötti eltérés mérésén alapuló impulzus-koincidencia toronmonitort fejlesztett ki alacsony szintű folyamatos méréshez [104]. A készülék szintén egy átáramlásos szcintillációs cellát tartalmaz, amely egy fotomultiplier csőhöz csatlakozik, amely egy egyedi kiépítésű, három időkapus impulzus-koincidencia körhöz csatlakozik, melynek feladata a Rn-220-Po-216 beütésszámok kiválogatása az alfaimpulzus-sorozatból.

Machaj és társai szintén egy szcintillációs cellát használtak a radon és toron aktivitás mérésére [108]. A szűrt levegőt a cellán átáramoltatták, majd 3 – 10 és 20 – 30 perces periódusokban regisztrálták az impulzusokat. A mérési eredményeket egy referencia értékkel vetették össze, amellyel a koncentrációk jó egyezést mutattak (a hiba radon esetén 1 %, toron esetén 2 % volt).

Eappen és munkatársai egy online módszert fejlesztettek ki toronmérésre Lucas szcintillációs cella alkalmazásával, mely során lineáris regressziós módszert alkalmaztak a toronkoncentráció meghatározására [109]. Egy későbbi tanulmányuk során egy szcintillációs módszert dolgoztak ki kevert atmoszférájú térben végzett szimultán radon/toron meghatározásra [110]. A mérések során a kétszeri impulzusszámlálásos technikát (two counts method, TCM) alkalmazták. A radon és toron aktivitáskoncentrációja a felírt lineáris egyenletrendszerből meghatározható. A módszer hatékonynak bizonyult a radon- és toronkoncentráció pontos és gyors meghatározására kevert térben. 2008-as cikkükben prezentálták az eredményeiket, valamint a módszerhez tartozó matematikai leírást. Konklúzióként kiemelik, hogy a szcintillációs cellával történő toronmérésnek viszonylag magas a kimutatási határa, így alacsony szintű környezeti méréseknél nem minden esetben alkalmazható, viszont magas toronhátterű helyek (pl. uránbányák környezetében) esetében és kalibrációs méréseknél jól használható.

Zhang és munkatársai környezeti toronméréseket végeztek a hordozható Pylon AB-5 típusú szcintillációs számlálóval [111]. Az eredményeket a Durridge RAD7 típusú aktív radon/toron minitorral vetették össze, melyek jó egyezést mutattak. Az eltérés minden esetben 10 %-on belül volt.

### II.3.3. Radon/toron exhaláció mérése akkumulációs módszerrel

Az akkumulációs módszernél az exhalálódott radont egy zárt edényben összegyűjtik, majd meghatározzák:

$$E = \frac{C \cdot \lambda \cdot V}{M \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t})} \quad (\text{II.3-2})$$

ahol  $E$  az exhaláció ( $\text{Bq kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$ );  $C$  a mért aktivitáskoncentráció ( $\text{Bq m}^{-3}$ );  $\lambda$  a bomlási állandó ( $\text{s}^{-1}$ );  $V$  az akkumulációs térfogat ( $\text{m}^3$ );  $M$  a minta tömege ( $\text{kg}$ );  $t$  az akkumulációs időtartam ( $\text{s}$ ).

A radonkoncentráció a bomlás miatt egy határértékhez tart, ami gyakorlatilag az anyaelem aktivitása. Az egyensúlyi helyzet kb. 27 nap alatt áll be.

Zárt térben az akkumulációs idővel csökken az exhaláció, mivel az akkumulációs térben fellépő koncentrációnövekedés gátló hatást fejt ki a kiáramlásra, valamint nagy fajlagos felület esetén a pórusok felületi adszorpciója is megnő, ami csökkenti az akkumulációs tér radonkoncentrációját, ezt „back diffusion effect”-nek (BD) nevezik [112]. A BD mérés technikai szempontból akkor tekinthető elhanyagolhatónak, ha a pórustérfogat kisebb, mint az akkumulációs tér 10 %-a [113]. A BD mértéke csökkenthető az akkumulációs idő csökkentésével, amit a műszer érzékenysége, kimutatási határa, valamint a minta mennyisége és exhalációs tulajdonságai határoznak meg.

A telítési értékhez tartozó radonkoncentráció a fenti összefüggés segítségével meghatározható, a minta rádiumtartalmának, valamint a szabadexhalációval az akkumulációs térbe jutott radon mennyiségének (ami a radonpotenciállal egyenlő) ismeretében pedig az emanációs tényező számolható.

A módszer előnye, hogy egyetlen rövid idejű (1-2 nap) méréssel a rádiumtartalom ismeretében a fajlagos exhaláció, az emanációs tényező, valamint a radonpotenciál is meghatározható.

## II.4. Toronmonitorok kalibrálása

### II.4.1. Kalibrációs kamrák

A világban jelenleg három helyen üzemel jól működő toronkamra: a japán National Institute of Radiological Sciences (NIRS) intézetben [3, 114], a németországi Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) intézetben [115], valamint a franciaországi Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) intézetben [134, 135].

A NIRS kamra egy  $150 \text{ dm}^3$  térfogatú saválló acél tartály, melyben a toronatmoszférát külső tóriumharisnya alapú forrás segítségével biztosítják [1]. A kamrában kialakuló toronkoncentráció szabályozása a harisnyák számának változtatásával, valamint a páratartalom szabályozásán keresztül lehetséges.

A PTB kamra jóval nagyobb,  $6 \text{ m}^3$  térfogatú, anyaga saválló acél. Forrásként elektrodepozícióval leválasztott Th-228 korongokat alkalmaznak. Ezek nyílt, exhalációs források, melyeket a kamrán belül helyezkednek el (egyszerre maximum 10 db). A toronkoncentráció szabályozása a kamrában elhelyezett források számának változtatásával lehetséges.

Az IRSN radonkamráját a Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) laboratóriummal együttműködve fejlesztették tovább toronkalibrálás céljára. A kamrában átáramlásos Th-228 forrással alakítanak ki toronatmoszférát, melyet a bomlástermékek alfa-spektrometriás vizsgálatával validálnak.

A Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében korábban kialakításra került egy toron kalibráló kamra (RRI kamra), melynél a NIRS kamrát vették alapul. A kamra egy  $200 \text{ dm}^3$  térfogatú acél tartályból áll, melyeken egy belépő és három kilépő nyílás került kialakításra.

A kalibrációs mérésekhez jelenleg természetes összetételű tórium-nitrátból készült kerámiaforrás áll rendelkezésre három különböző koncentrációban. Ezek a források azonban – a természetes összetételnek köszönhetően – tartalmaznak Ra-226 izotópot, melyből Rn-222 izotóp keletkezik, ami megemeli a toronmérés kimutatási határát. Ezért kísérleteket végeztem a radonmentes toronforrás kialakítására vonatkozóan. Ezek a vizsgálatok a III.3. fejezetben találhatók.

Korábban bemutatásra került, hogy a forrás emanálóképességét a levegő nedvességtartalma jelentősen befolyásolja, ezért a kalibráló kamra kialakításánál

lényeges feladat a páratartalom szabályozás megoldása. Szintén befolyásolja az emanációt a külső hőmérséklet, ezért ezt is célszerű kontrollálni. A hőmérséklet és páratartalom szabályozása és mérése a kalibráló kamrában korábban megoldatlan volt. Ezek a fejlesztések jelen munka keretein belül valósultak meg. Bemutatásuk a III.1. fejezetben található.

A toronkoncentráció monitorozása Sarad EQF 3220 műszerrel történik, azonban a validálható méréshez mintavételes módszer javasolt, ezért erre a célra egy mintavételi kivezetési pont került kialakításra. A referencia eljárások részletes vizsgálata a III.2. fejezetben olvasható.

#### II.4.2. Toronforrás készítési eljárások

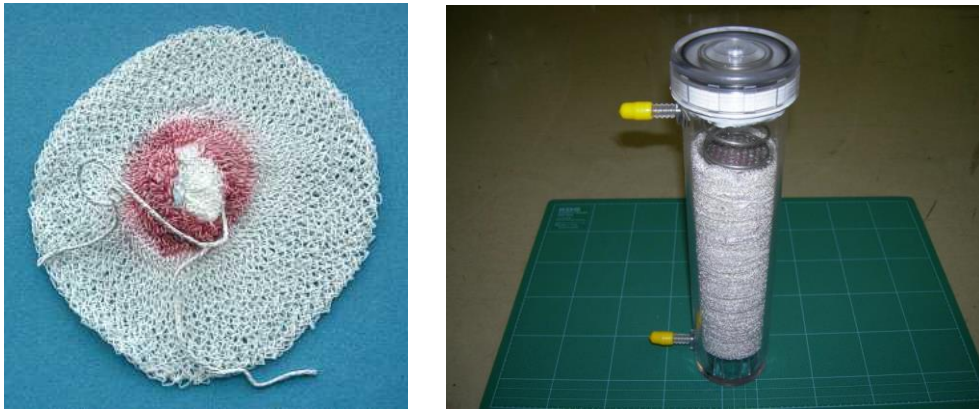
Radon- és toronmonitorok, valamint leányelemmérések validálására a Pylon Electronics Inc. gyárt különféle forrásokat (II.4-1. ábra) [136], azonban ezek viszonylag költségesek, valamint toronkalibráció esetén problémát jelent a kamrában kialakuló aktivitáskoncentráció pontos meghatározása.



II.4.1-ábra: A Pylon Electronics Inc. által forgalmazott radon/toronforrás (balra) és leányelem forrás (jobbra) [136]

Szakirodalmi adatok alapján a tórium-oxid tartalmú gázharisnyákat (II.4-2. ábra) széles körben alkalmazzák radioaktív sugárzás (torongáz) előállítására. Kalibrációs célokra például a japán National Institute of Radiological Sciences (NIRS)

kutatóintézetben működő kalibráló kamrában alkalmaznak gázharisnya-alapú toronforrásokat [1].



*III.4-2. ábra: Tórium-oxid tartalmú gázharisnya (balra) [137], valamint az ebből készült toronforrás (jobbra) [1]*

A Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében jelenleg három különböző aktivitású, hőkezelt, természetes tórium-nitrátot tartalmazó kerámiagolyókból készült toronforrás áll rendelkezésünkre (II.4-3. ábra), azonban a természetes összetételnek köszönhetően ezek Ra-226-ot tartalmaznak, ezért a radon zavaró hatásának kiküszöbölése érdekében új módszer fejlesztésére van szükség. A természetes összetételű tórium-nitrátot alkalmazó források jelentős problémája, hogy a vegyszer – a Th-232 mellett – az U-238 bomlási sorában található Th-230 izotópot is tartalmazza, melyből – Ra-226-on keresztül – Rn-222 keletkezik, amely számunkra „szennyezőanyag”, mivel jelentős háttérnövekedést eredményez, és így a toronmérések során zavaró tényezőként hat [78, 131]. Ez a probléma úgy küszöbölhető ki, ha valamilyen kémiai szeparációs technikával elkülönítjük a Th-232 bomlási sorának valamely elemét, és ebből izotópgenerátort alakítunk ki. Ezzel a technikával (elméletileg) radonmentes toronforrás készíthető.



II.4-3. ábra: Kerámia alapú toronforrás

A bomlási sorokat (II.1-2. és II.1-3. ábra) tanulmányozva látható, hogy három izotóp elválasztása jöhet szóba: rádium, tórium és aktínium. A rádiumizotópok szeparációja nem célravezető, mivel az így elválasztott elegy is a természetes összetételnek megfelelő mennyiségben fogja tartalmazni a zavaró Ra-226 izotópot, így a további vizsgálatokból ez kizárható. A további lehetőségek vizsgálatához fontos a radioaktív egyensúlyok elméleti hátterének áttekintése.

## II.5. Radioaktív egyensúlyok

Ha egy radioaktív izotóp a nuklidtáblázatban a stabilitási egyenestől (könnyű elemek esetében  $Z = N$ , ahol  $Z$  a rendszám (protonok száma),  $N$  a neutronsám) távol helyezkedik el, a leányelemei is radioaktívak lehetnek. Ez például a természetes urán és tórium bomlási sorok nehéz elemei esetében figyelhető meg, melynél az U-238 és Th-232 izotópok bomlásából keletkező radioaktív leányelemek bomlási sort alkotnak.

Az anyaelem atommagja a radioaktív bomlás alaptörvényének megfelelően bomlik:

$$A_1 = -\frac{dN_1}{dt} = \lambda_1 N_1 \quad (\text{II.5-1})$$

$$N_1 = N_1^0 e^{-\lambda_1 t} \quad (\text{II.5-2})$$

$$A_1 = A_1^0 e^{-\lambda_1 t} \quad (\text{II.5-3})$$

A leányelemek mennyiségét két folyamat határozza meg: a radioaktív bomlás, valamint az anyaelem bomlásából származó radioaktív felszaporodás:

$$\frac{dN_2}{dt} = -\lambda_2 N_2 + \lambda_1 N_1 \quad (\text{II.5-4})$$

A differenciálegyenlet megoldása:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \quad (\text{II.5-5})$$

$N_2^0 = 0$  kezdeti feltétel alkalmazásával:

$$A_2 = \lambda_2 N_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (\text{II.5-6})$$

A fenti egyenlet a leányelem időbeli aktivitásváltozását írja le. Az időbeli lefutás szempontjából a bomlási állandók egymáshoz viszonyított aránya a meghatározó.

### II.5.1. Szekuláris egyensúly

Szekuláris egyensúlyról akkor beszélünk, ha az anyaelem felezési ideje a leányeleméhez viszonyítva végtelen nagynak tekinthető, tehát  $\lambda_1 \ll \lambda_2$ .

Az anyaelem aktivitása az előzőekhez hasonlóan számolható, a leányelem aktivitását pedig a következő összefüggés adja meg,  $A_2^0 = 0$  kezdeti aktivitást feltételezve:

$$A_2 = A_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (\text{II.5-7})$$

$\lambda_1 = 0$  esetén:

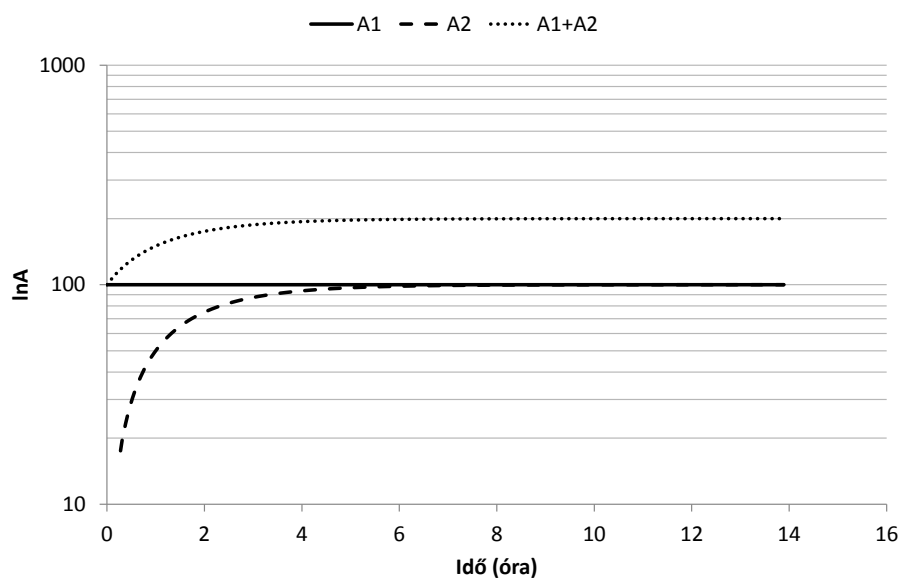
$$A_2 = A_1^0 (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (\text{II.5-8})$$

Végül (ha  $t \rightarrow \infty$ ) a leányelem aktivitása az anyaelem aktivitásával lesz egyenlő:



$$A_2 = A_1^0 e^{-\lambda_1 t} = A_1 \quad (\text{II.5-9})$$

Az aktivitások időbeli alakulását szekuláris egyensúly esetén a II.5-2. ábra szemlélteti.



II.5-2. ábra: Az aktivitások időbeli alakulása szekuláris egyensúly esetén ( $A_1$ : anyaelem aktivitása,  $A_2$ : leányelem aktivitása)

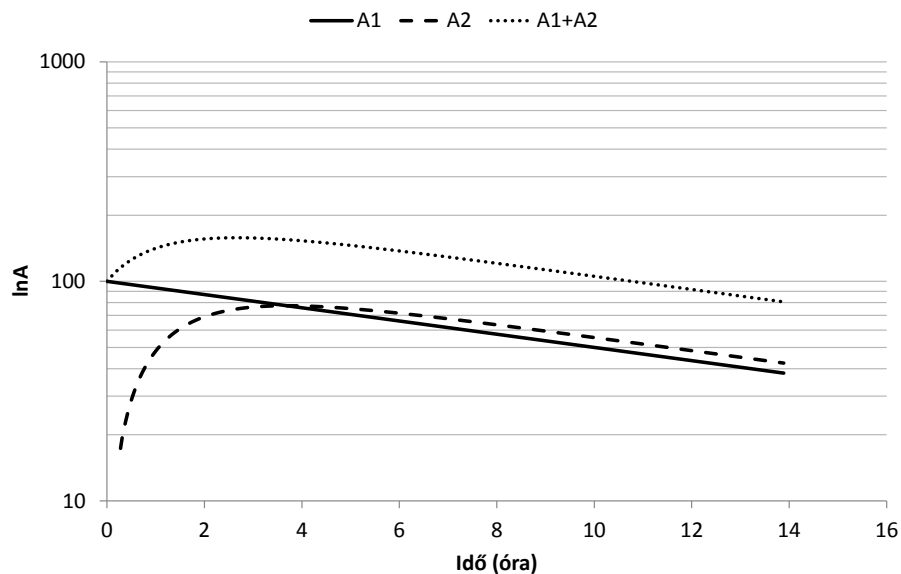
## II.5.2. Tranziens egyensúly

Ebben az esetben az anyaelem felezési ideje még mindig nagyobb a leányeleménál, de nem tekinthető végtelennek, tehát  $\lambda_1 < \lambda_2$ .

A leányelem aktivitása a szokott módon határozható meg. Kellően hosszú idő után beáll a stacioner állapot, melyben a leányelem aktivitása meghaladja az anyaelem aktivitását:

$$A_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_1^0 e^{-\lambda_1 t} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_1 \quad (\text{II.5-10})$$

A folyamatot a II.5-3. ábra szemlélteti.



II.5-3. ábra: Az aktivitások időbeli alakulása tranziens egyensúly esetén ( $A_1$ : anyaelem aktivitása,  $A_2$ : leányelem aktivitása)

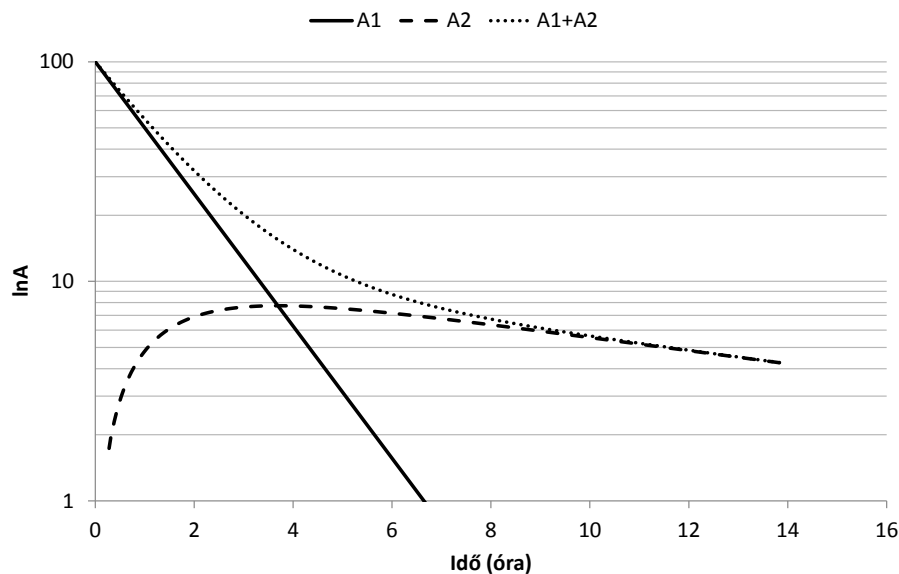
### II.5.3. Nincs egyensúly

Ebben az esetben a leányelem felezési ideje nagyobb, mint az anyaelemé, tehát  $\lambda_1 > \lambda_2$ .

A leányelem aktivitása a szokott módon számolható. Végül csak a leányelem aktivitása marad a mintában, mivel az anyaelem gyorsabban bomlik:

$$A_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} A_1^0 e^{-\lambda_2 t} \quad (\text{II.5-11})$$

Az aktivitásviszonyok a II.5-4. ábrán láthatók.



II.5-4. ábra: Az aktivitások időbeli alakulása nem egyensúlyi állapot esetén (A1: anyaelem aktivitása, A2: leányelem aktivitása)

#### II.5.4. Bomlási sorok aktivitásviszonyainak leírása

A fenti összefüggések egy radioaktív anyaelem, és az abból keletkező radioaktív leányelem aktivitásának időbeli leírására alkalmasak, azonban többemű bomlási sorok aktivitásviszonyainak leírása bonyolultabb feladat. Erre a Bateman-féle általános explicit formula alkalmas, mely szerint egy bomlási sor n-edik tagjának aktivitása a következőképpen fejezhető ki [139]:

$$A_n = \sum_{i=1}^n \left[ A_i^0 \times \prod_{j=i}^{n-1} \lambda_j \times \sum_{j=i}^n \frac{e^{-\lambda_j t}}{\prod_{p=i, p \neq j}^n (\lambda_p - \lambda_j)} \right] \quad (\text{II.5-12})$$

### II.6. Radonmentes toronforrás készítésének lehetséges módjai

#### II.6.1. Természetes bomlási sorok egyensúlyi viszonyai

A fentieket felhasználva egyszerűen meghatározhatók az U-238 és Th-232 bomlási sorok izotópjai között fennálló egyensúlyi viszonyok. Az egyes izotópok között kialakuló szekuláris egyensúly 95 %-os beállításához szükséges időket a II.6-1. táblázat tartalmazza.

*II.6-1. táblázat: Az U-238 és Th-232 bomlási sorok egyensúlyi viszonyai (az értékek a szekuláris egyensúly 95 %-os beállításához szükséges időt jelentik)*

U-238 sor			Th-232 sor		
Izotóp	Felezési idő	Egyensúly a leányelemével	Izotóp	Felezési idő	Egyensúly a leányelemével
U-238	4,5 10 <sup>9</sup> év	104 nap	–	–	–
Th-234	24 nap	5 perc	Th-232	1,4 10 <sup>10</sup> év	25 év
Pa-234	1,17 perc	nincs	Ra-228	5,8 év	1 nap
U-234	250 000 év	470 000 év	Ac-228	6,1 óra	nincs
Th-230	80 000 év	7000 év	Th-228	1,9 év	16 nap
Ra-226	1602 év	17 nap	Ra-224	3,6 nap	4 perc
Rn-222	3,8 nap	14 perc	Rn-220	55 s	0,6 s

Az értékek alapján megállapítható, hogy toronforrás készítés céljára a tóriumelválasztás megfelelőnek tűnik, hiszen a Th-230 izotóp felezési ideje (kb. 80 000 év) kellően nagy, így leányelemével, a számunkra nem kívánatos Ra-226 izotóppal a szekuláris egyensúly csak nagyon lassan, kb. 7000 év elteltével áll be, így az így elkészített forrás hosszú ideig Ra-226 mentesnek tekinthető.

Az aktíniumelválasztásnál a problémát az jelenti, hogy az Ac-228 és leányeleme, a Th-228 között nincs egyensúly, azonban az aktínium az egyetlen olyan kémiai elem, amely nem szerepel az U-238 bomlási sorában, ezért az aktínium szeparációjával elméletileg teljesen Ra-226 mentes forrás készíthető. Mivel az Ac-228-nak viszonylag rövid a felezési ideje (6,1 óra), és anyaelemével, a Ra-228-mal a szekuláris egyensúly viszonylag gyorsan (kb. 1 nap alatt) beáll, így elméletben lehetőség nyílik egy olyan Ra-228 izotópgenerátor készítésére, melyből az Ac-228 naponta kinyerhető, és a forráskészítés során a Th-228 aktivitás felszaporítható. Az itt leírtak gyakorlati megvalósítása előtt modellszámításokat végeztem arra vonatkozóan, hogy mekkora Th-228 aktivitások nyerhetők ki a különböző eljárásokkal. Ezeket a számításokat a III.3.3.1. fejezetben mutatom be.

## **II.6.2. Az aktínium és a tórium tulajdonságai**

A kísérleti megvalósítás előtt fontos a két elválasztandó elem fizikai, kémiai tulajdonságainak áttekintése. A következő fejezetben ezeket foglalom össze.

### **II.6.2.1. Aktínium**

Az aktínium radioaktív kémiai elem, a periódusos rendszer 7. sorának 3. eleme, rendszáma 89. 1899-ben fedezte fel André Debierne francia kémikus. Nevét a görög aktis, aktinos (sugár, nyaláb) szóból kapta [140]. Az aktínium volt az első nem primordiális radioaktív elem, melyet izoláltak. Az aktíniumról kapta a nevét az aktinidák csoport, amely az aktínium és a laurencium közötti 15 elemet foglalja magában [141].

Ezüstös színű, puha fém. Erős radioaktív sugárzásának köszönhetően sötétben kék fényel világít [142]. Olvadáspontja 1050 °C, forráspontja 3200 °C. Fizikai, kémiai tulajdonságai a lantánéhoz hasonlóak. [140]. Oxigénnel és a levegő nedvességtartalmával gyorsan reagál, és felületén fehér oxidréteg keletkezik, amely megvédi a további oxidációtól. Majdnem az összes vegyületében +3 oxidációs állapotú [141].

Összes izotópjá radioaktív. A természetben nyomnyi mennyiségben fordul elő az urán- és tóriumércben, Ac-227 (21,77 óra felezési idő, alfa- és béta-bomló) és Ac-228 (6,15 óra felezési idő, béta-bomló) formájában. Lantánnal való hasonlósága miatt az ércből történő kinyerése nem praktikus, ehelyett nukleáris reaktorokban állítják elő Ra-226 neutronbesugárzásával [141].

Kb. 150-szer radioaktívabb, mint a rádium, emiatt neutronforrásként használják. Emellett az Ac-225 izotópot gyógyászatban alkalmazzák a radio-immunoterápiában, vagy izotópgenerátorként Bi-213 gyártásra [142].

### **II.6.2.2. Tórium**

A tórium az aktinida család tagja, a periódusos rendszer 7. sorában helyezkedik el, rendszáma 90. 1828-ban fedezte fel Jöns Jacob Berzelius svéd kémikus. Nevét Thor skandináv istenről, a mennydörgés istenéről kapta. Kezdetben Berzelius nem ismerte

fel, hogy radioaktív, ezt 70 évvel később, 1898-ban fedezte fel Marie Curie lengyel-francia fizikus és Gerhard C. Schmidt angol kémikus [143].

Ezüstfehér, puha, radioaktív fém. Tulajdonságait tekintve az ólomhoz hasonló, jól megmunkálható. Olvadáspontja 1800 °C, forráspontja 4500 °C, sűrűsége 11,7 g cm<sup>-3</sup>. Oxigénnel szobahőmérsékleten lassan, magasabb hőmérsékleten gyorsabban reagál, miközben tórium-dioxid (ThO<sub>2</sub>) keletkezik [143]. Ennek következtében fénye homályosodik, majd színe szürkévé, később feketévé válik. Vízzel lassan reagál, savakban általában nem oldódik, kivéve a sósavat. Levegőn hevítve meggyullad és fehér lánggal ég [144].

A természetben 6 izotópja fordul elő, összes izotópja radioaktív. A földkéreg gyakori eleme, háromszor gyakoribb, mint az urán [144]. Becslések alapján a földkéreg kb. 15 ppm koncentrációban tartalmazza. Leggyakoribb ásványai a torit és a monacit. A monacit gyakran fordul elő bizonyos homokfajtákban, tóriumtartalma akár a 10 %-ot is elérheti [143]. Kis mennyiségben a legtöbb kőzetben és talajban megtalálható. Alacsony oldhatóságának köszönhetően környezeti mobilitása nem túl jelentős [144]. Legstabilabb izotópja a Th-232, mely a természetes tórium majdnem teljes mennyiségét adja. Gyengén radioaktív, felezési ideje a jelentős radioaktív elemek közül a legnagyobb (14,05 10<sup>9</sup> év), az univerzum életkorával összemérhető, nagyon lassan alfa-bomlással Ra-228 izotóppá alakul [145].

Kereskedelmi szempontból a legjelentősebb tórium vegyület a tórium-dioxid. Ez a legmagasabb olvadásponttal rendelkező oxid (3300 °C). Kerámiákban, speciális üvegekben és katalizátorként alkalmazzák [144]. Régebben elterjedten alkalmazták gázlámpákban fényforrásként és ötvözőanyagként, de radioaktivitása miatt használatát megszüntették. Azonban hegesztő elektródák ötvözőanyagaként jelenleg is elterjedten alkalmazzák [145]. Egy másik jelentős tóriumvegyület a tórium-fluorid (ThF<sub>4</sub>), melyet szén ívlámpákban használnak. Jelenleg folynak a kutatások a tórium nukleáris üzemanyagként történő hasznosítására [143].

### **II.6.3. Ioncserés elválasztás**

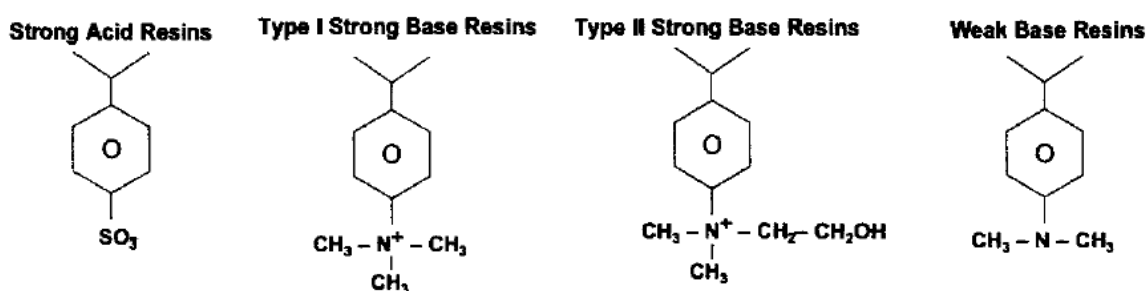
A szakirodalom alapján aktinidák elválasztására különféle ioncserés technikákat alkalmaznak [121-123], ezért a következőkben röviden ismertetem az ezekkel kapcsolatos legfontosabb tudnivalókat.

Az ioncserélő anyagok oldhatatlan anyagok, melyek lazán kötött ionokat tartalmaznak, amik kicserélhetők más, oldatban lévő ionokkal. Az ioncsere semmilyen fizikai változást nem okoz az ioncserélő anyagban. Az ioncserélők oldhatatlan savak és bázisok, melyeknek szintén oldhatatlan sóik vannak, és így lehetőség van mind a kationok, mind az anionok lecserélésére. Számos természetes anyagban is (proteinek, cellulóz, élő sejtek, talajrészecskék) fontos szerepet tölt be ez a folyamat [146].

A gyantákat 0,5 – 1 mm átmérőjű gömbölyű gyöngyök formájában gyártják. Még mikroszkóp alatt nézve is szilárdnak tűnnek, de molekuláris méretben a szerkezet teljesen nyitott. Ez azt jelenti, hogy a gyantaágyra helyezett folyadék keresztülfolyik a térhálós polimeren, és közvetlen érintkezésbe kerül az ioncserélő helyekkel.

Az ioncserélő gyanták négy fő csoportba oszthatók: erősen savas kationcserélők, gyengén savas kationcserélők, erősen bázikus anioncserélők és gyengén bázikus anioncserélők. Ezeken a fő osztályokon belül különböző fizikai és kémiai tulajdonságokkal rendelkező gyantatípusok léteznek [147].

A radiokémiai szeparációs eljárások során széleskörűen elterjedt a DOWEX ioncserélő gyanták alkalmazása [122, 123]. A DOWEX ioncserélő gyanták nagy fizikai és kémiai stabilitással rendelkeznek, ami elengedhetetlen a feldolgozás ezen területén. Manapság a legtöbb ioncserélő gyanta polimerkémiai alapon készül sztirolból, divinilbenzollal térhálósítva, amelyre különböző funkciós csoportokat (szulfonát, kvaterner amin, terciér amin csoportok) raknak. Ezen kívül különböző speciális funkciós csoportok is létrehozhatók az egyes kémiai feldolgozási eljárásokhoz. A főbb DOWEX gyantatípusok funkciós csoportjait a II.6-7. ábra mutatja be [148].



II.6-7. ábra: A DOWEX gyanták főbb típusai [148]

A DOWEX gyanták a következő főbb típusokba sorolhatók:

- Erősen savas gyanták;
- Erősen bázikus gyanták;

- Gyengén bázikus gyanták;
- Gyengén savas gyanták;
- Kelátképző gyanták;
- Polimer adszorbensek;
- Ionvisszatartó gyanták;
- Sztírol-DVB kopolimerek.

Az ioncserés eljárások kivitelezése általában átáramlásos oszlopszerű berendezések formájában történik. A tipikus laboratóriumi tesztek üveg vagy plastik csövekben történnek. Az oszlopot nem töltik teljesen gyantával, hogy az oszlopot periodikusan vissza lehessen mosni a gyanta helyreállítása céljából, és hogy az általa megszűrt szennyeződésekeltávolítsák. Néhány alkalmazás során a gyanta jelentősen megduzzadhat, melyet figyelembe kell venni, hogy megelőzzük az oszlop törését.

Az áramlást szivattyúkkal, vagy konstans fejnnyomást biztosító berendezésekkel szabályozzák. Az elfolyó analízise történhet mintavételezéssel és teszteléssel, vagy online módon. Figyelmet kell fordítani arra, hogy a gyantán mindig folyadék legyen. Ha levegő lép az oszlopba és megváltoztatja a gyanta elrendeződését, az oszlopot vissza kell mosni, hogy eltávolítsuk az ágyban maradt levegőt.



### III. KÍSÉRLETI RÉSZ

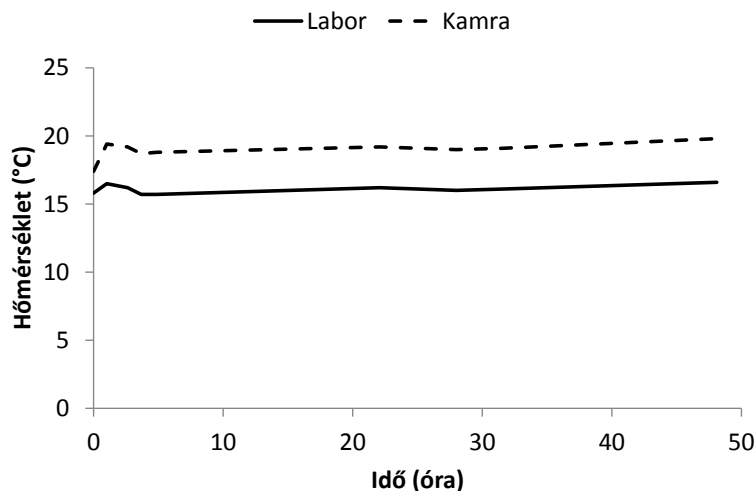
#### III.1. Kamrafejlesztés

##### III.1.1. Hőmérséklet-szabályozás

A toronkoncentráció állandó szinten tartásához nélkülözhetetlen az emanáció, illetve exhaláció szempontjából releváns paraméterek (hőmérséklet, páratartalom) szabályozásának megoldása. A hőmérsékletszabályozás a japán NIRS toronkamra mintájára egyszerűen megoldható, ha a kamrát légkondicionált helyiségben helyezzük el [3]. Ez okból a kamrát egy új, légkondicionáló berendezéssel ellátott laboratóriumba helyeztem át. A hőmérséklet a klímaberendezés segítségével szabályozható.

A kísérletek során a laboratórium (külső), illetve a kamra (belső) hőmérsékletét és páratartalmát mértem. Ezt meteorológiai állomás segítségével valósítottam meg, melynek külső szenzorát a kamrában helyeztem el.

A kísérletek során bebizonyosodott, hogy a kamrában a hőmérséklet 3 °C-kal a labor hőmérséklete felett stabilizálódik. Az elvégzett tesztek bebizonyították, hogy a beállított hőmérséklet állandó szinten tartható ezzel a módszerrel. A kalibráló kamra és a laboratórium hőmérsékletének változása a III.1-1. ábrán látható. A kalibráló kamra átlaghőmérséklete a mérés során 19,0 °C, a laboratóriumé 16,1 °C volt. A kalibráló kamrában mért értékek szórása 0,7 °C.



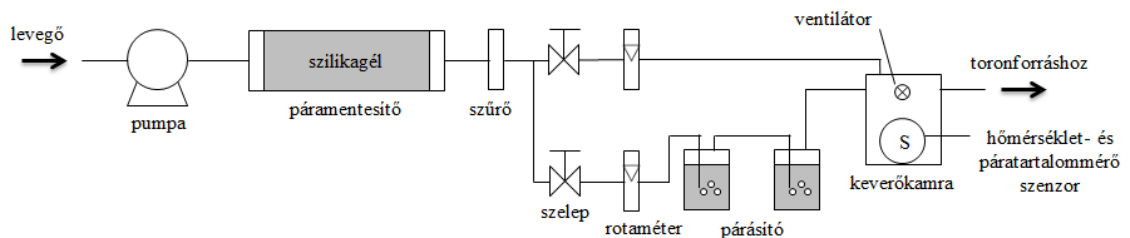
III.1-1. ábra: A laboratórium és a kalibráló kamra hőmérséklete az idő függvényében

### III.1.2. Páratartalom-szabályozás

A páratartalom szabályozása a kamra szabályozhatósága szempontjából kulcskérdés, hiszen az emanációs tényező nagyban függ a páratartalomtól. Ha ugyanis a szemcsék felületén hidrátburok alakul ki, a kilökődő radonatom rövidebb úton fékeződik le, így kisebb az esélye, hogy egy szomszédos szemcsébe csapódjon be. Ezért minél magasabb a páratartalom, annál több radonatom tud kijutni a szemcséből – annál nagyobb az emanáció [116]. A japán NIRS kutatóintézetben a toronkoncentráció szabályozását – többek közt – a páratartalom szabályozásán keresztül valósítják meg [1]. Fontos lenne tehát meghatározni a páratartalom toronkoncentrációra gyakorolt hatását az alkalmazni kívánt toronforrások esetén. Ehhez egy stabil, jól kezelhető páratartalom-szabályozó rendszer kialakítása szükséges.

#### III.1.2.1. A páratartalom-szabályozó rendszer kialakítása

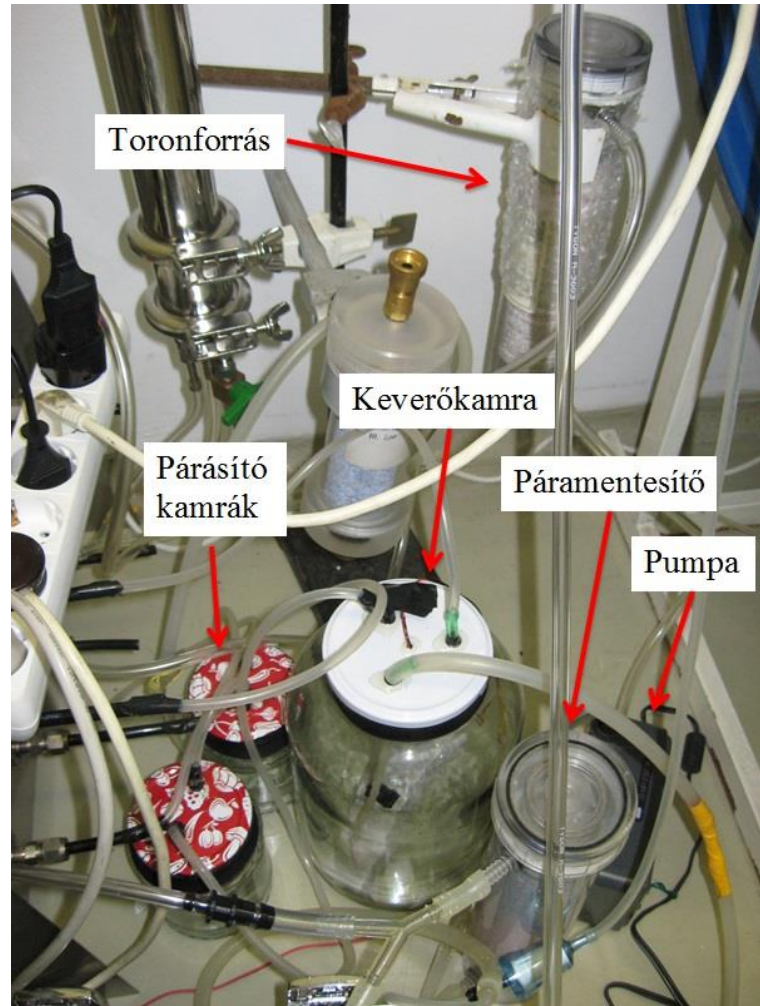
A páratartalom-szabályozó rendszer kialakításakor a japán NIRS kamránál alkalmazott megoldást vettem alapul [1]. Ennek vázlatát a III.1-2. ábrán látható.



III.1-2. ábra: A páratartalom-szabályozó rendszer vázlatát

A belépő levegő egy nedvességmegkötő anyaggal (szilikagél) töltött oszlopon halad keresztül, amely a levegő páratartalmát 10 % alá csökkenti. Ezután a légáram két ágra osztódik. Az egyik ág sorba kötött, vízzel teli kamrákon halad keresztül, majd egy keverőkamrába csatlakozik (nedves ág). A másik ág közvetlenül a keverőkamrába van bekötve (száraz ág). A két ág térfogatárama szeleppel ellátott rotaméter segítségével ellenőrizhető és változtatható. A keverőkamrában a gázelegy homogenizálását ventilátor végzi. A páratartalom (és hőmérséklet) mérését a keverőkamrában elhelyezett meteorológiai szenzorral valósítottam meg. A páratartalom szabályozása a száraz és a nedves ág térfogatáramának arányával történik. Kiegészítésként a kamrán kívül

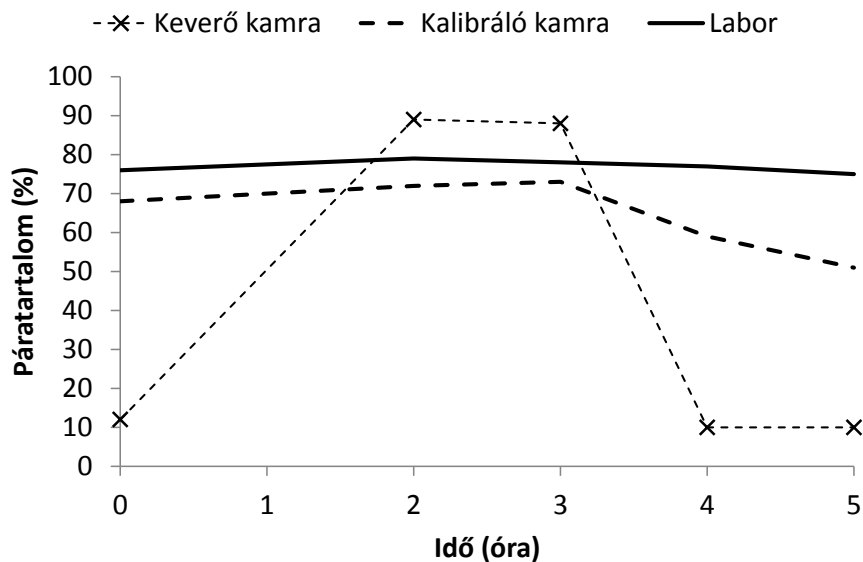
páratlanító berendezést helyeztem el, mellyel páras időben a laboratórium páratartalma csökkenthető, így a felhasznált szilikagél mennyisége csökkenthető. A páratartalom-szabályozó rendszer a III.1-3. ábrán látható.



III.1-3. ábra: A páratartalom-szabályozó rendszer

A kísérletek során a keverőkamra, a kalibráló kamra, valamint a laboratórium páratartalmát monitoroztam. Az emanáció szempontjából a keverőkamrában beállított páratartalom a meghatározó, mivel ez a levegőáram kerül közvetlenül a toronforrásra. A mérések során bebizonyosodott, hogy az alkalmazott megoldással a keverőkamrában a páratartalom 10 – 90 % tartományban jól szabályozható, a beállított érték stabilan tartható. Előzetes kalibráció során a térfogatáramok arányához a páratartalom százalékos értéke hozzárendelhető, így a későbbi kalibrációs méréseknél a páratartalom értéke rutinszerűen beállítható. A III.1-4. ábrán látható esetben először a nedves ágon maximális 4 l/perc térfogatárammal, a száraz ág teljes lezárásával maximális 90 %-os

páratartalmat állítottam be, majd ellentétes térfogatáramokkal (4 l/perc száraz ág, nedves ág elzárva) a keverőkamra páratartalmát 10 % alá csökkentettem (ennyi a páratartalom-mérő szenzor kimutatási határa).



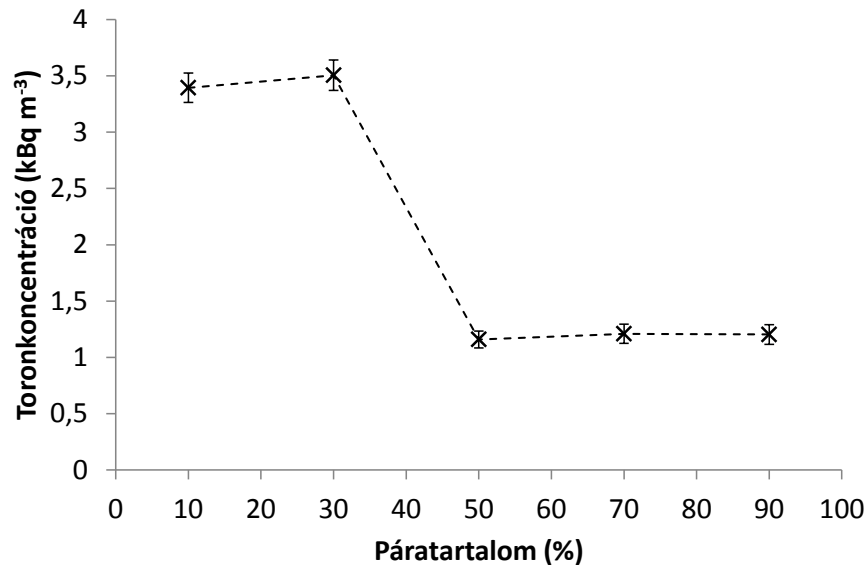
III.1-4. ábra: A páratartalom változása a keverőkamrában, a kalibráló kamrában és a laboratóiumban a maximális és a minimális páratartalom beállítása során

### III.1.2.2. A páratartalom hatása a toronkoncentrációra

A japán NIRS kutatóintézetnél alkalmazott toronforrás esetén – szakirodalmi adatok alapján – a toronkoncentráció a páratartalom változtatásán keresztül szabályozható, a páratartalom és a toronkoncentráció között exponenciális összefüggés van [114]. Emellett megjegyzendő, hogy a forrás ezen tulajdonsága nem feltétlenül előnyös, hiszen az így létrehozott toronatmoszféra rendkívül érzékeny a páratartalom változására, így azt nagyon pontosan konrollálni kell a stabil toronkoncentráció fenntartásához.

A toronkoncentráció és a páratartalom közötti összefüggés feltárása a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében kifejlesztett, kerámiaalapú toronforrások esetében idáig nem történt meg, ezért elvégeztem a kísérletet. A páratartalmat 10 – 90 % között változtattam, és mértem a kamrában kialakuló toronkoncentrációt. Az eredmények a III.1-5. ábrán láthatók. Ez alapján megállapítható, hogy a kerámiaforrások esetében a toronkoncentrációban egy meredek esés tapasztalható a 30 – 50 %-os tartományban. Ez valószínűleg annak tudható be, hogy a

kerámiagolyók felületén kialakuló hidrátburok gátolja a toronatom kijutását a golyókból. Ezáltal a kerámiaforrások esetében a toronkoncentráció szabályozása nem valósítható meg a páratartalom-szabályozáson keresztül, azonban ez egyben azt is jelenti, hogy a forrás nem érzékeny a páratartalom változására. A szabályozási feladat során tehát a cél, hogy a páratartalmat 30 % alatt tartsuk, így magas toronemanációt érhetünk el.



III.1-5. ábra: A toronkoncentráció változása a páratartalom növelésével kerámiaforrások esetén

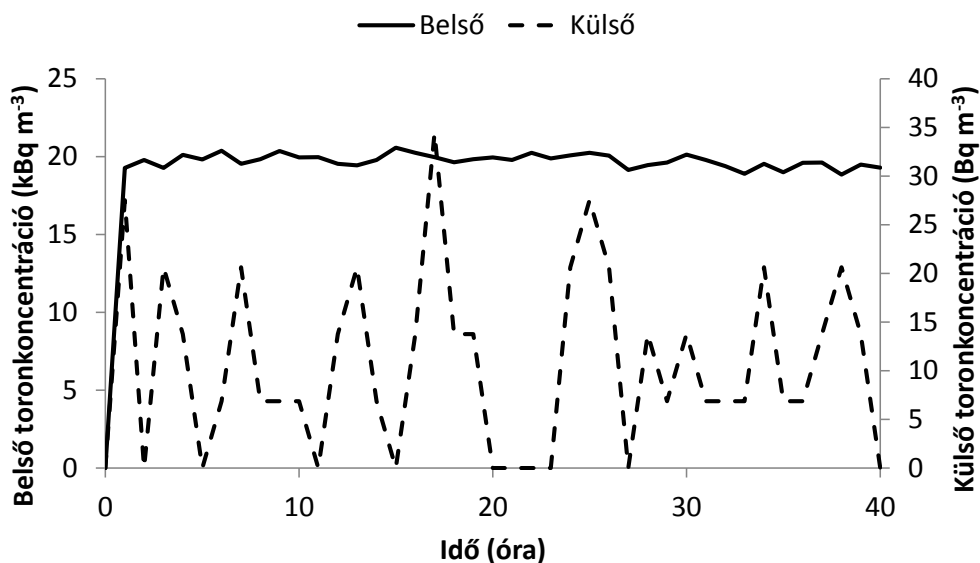
### III.1.3. A kamra tömítésének vizsgálata

A paraméterek (főként a toronkoncentráció) állandó értéken tartása fontos a kamra stabil működése szempontjából. Ehhez a kamra megfelelő tömítése elengedhetetlen. A kalibráló kamra egy 200 literes fémhordóból lett kialakítva, melyet fekvő helyzetben használunk (III.1-6. ábra). A hordó első lapja leemelhető, a műszerek behelyezése ezen keresztül történik. A tömítésnél ennek a lapnak a megfelelő zárását, illetve a hordón kialakított furatok, csatlakozók tömítését kell figyelembe venni.



*III.1-6. ábra: Az RRI kalibráló kamra*

Az előlap zárásánál gumitömítést, a csatlakozók esetén kétkomponensű ragasztót alkalmaztam. A tömítés megfelelőségét toronmérésen keresztül ellenőriztem. A kamrában kerámiaforrás segítségével torondús atmoszférát hoztam létre. A toronkoncentrációt a kamrán belül és azon kívül, a fedlap környezetében, Sarad EQF 3220 toronmonitorral mértem. A mérés eredményét a III.1-7 ábrán mutatom be. Látható, hogy míg a belső koncentráció egy órán belül beáll a kb.  $20 \text{ kBq m}^{-3}$  szintre, a külső koncentráció  $0 - 35 \text{ kBq m}^{-3}$  között ingadozik, tehát a kamra tömítései megfelelően izolálják azt a környezetétől.



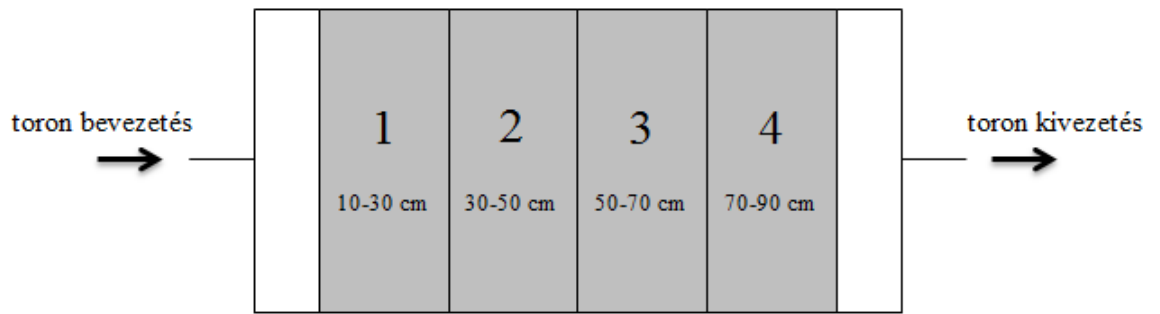
III.1-7. ábra: Külső és belső toronkoncentráció változása a kamra tömitéseinek ellenőrzése során

### III.1.4. Toronkoncentráció térbeli homogenitásának vizsgálata

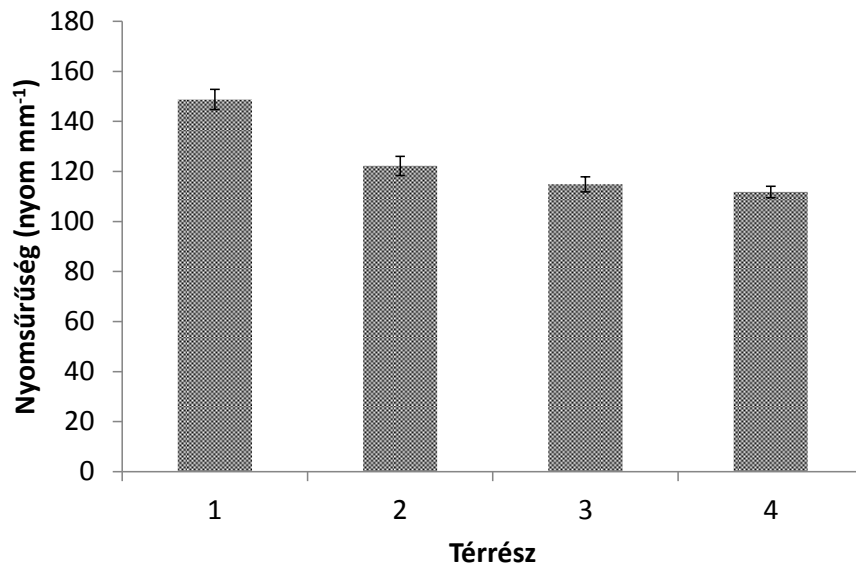
Fontos paraméter a kamra stabilitására vonatkozóan a toronkoncentráció térbeli eloszlása a kamrán belül. Ennek meghatározására kétféle (nyomdetektoros és mintavételes) vizsgálatot végeztem.

#### III.1.4.1. Térbeli homogenitás vizsgálata nyomdetektoros méréssel

A vizsgálat során a kamrában különböző pozícióban 30 db CR-39 nyomdetektort helyeztem el, majd a kerámiaforrást a kamrához csatlakoztattam. A toronkoncentráció homogenizálását a kamra hátsó lapjára szerelt ventilátor végzi. A toron belépési pontja 10 cm-rel az előlap mögött van, kilépési pontja közvetlenül az előlapon. A kamra belső terét a hosszirányú koordináta mentén 4 elméleti térrészre osztottam, és ezekben vizsgáltam a nyomdetektorokon kapott nyomsűrűségeket (III.1-8. ábra). A nyomdetektorokat a kamrában egyenletesen osztattam el. Az 1. térrészben 9 detektort helyeztem el, mivel várhatóan itt a legkevésbé homogén a koncentráció. A 2-4. térrészbe 7-7 detektor került. A homogenitásra vonatkozó megállapításokat az egyes térrészek esetén kapott nyomsűrűségek átlaga alapján tettem. A vizsgálat eredményeit a III.1-9. ábra mutatja be.



III.1-8. ábra: A kamra felosztása 4 térrészre



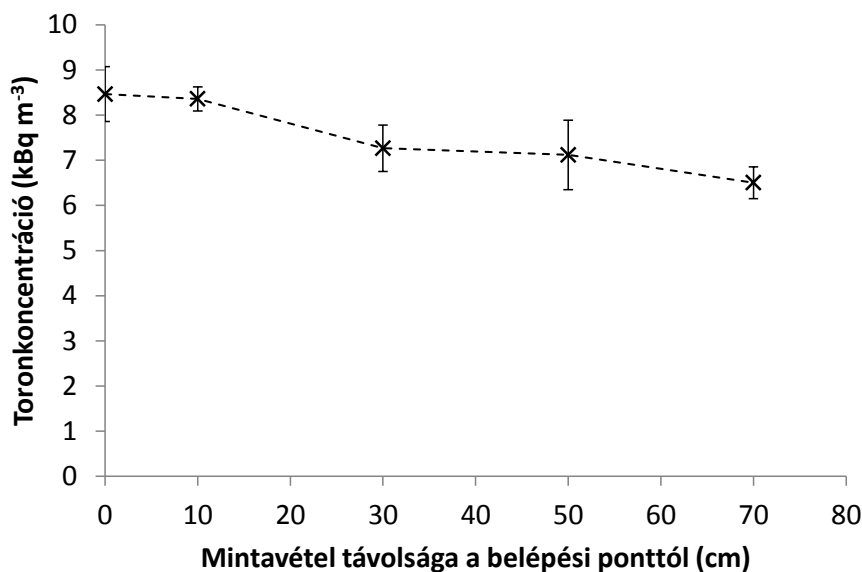
III.1-9. ábra: A nyomdetektoros térbeli homogenitásvizsgálat eredményei, a kamra különböző térrészeiben mért nyomsűrűségek átlaga

A kísérlet eredménye alapján megállapítható, hogy a belépési ponttól távolodva a nyomsűrűség fokozatosan csökken. Az 1. térrészhez képest a 2. térrészben 82 %, a 3. térrészben 77 %, míg a 4. térrészben 75 % nyomsűrűséget kaptam. Ezek alapján úgy tűnik, hogy a pontos kalibráció érdekében a nyomdetektorokat a 2. térrészben, azaz 30-50 cm között javasolt elhelyezni, valamint hogy a mintavétel is ebben a mélységben ajánlott elvégezni.



### III.1.4.2. Térbeli homogenitás vizsgálata mintavételes méréssel

Egy másik módszer a koncentrációeloszlás vizsgálatára az, hogy a kamra különböző pontjairól levegőmintát veszünk, majd ebben egy toronmonitor segítségével meghatározzuk a toronkoncentrációt. Mintavétel céljából a kamra előlapján egy furatot alakítottam ki melyen keresztül műanyagcsövet vezettem a kamra belsejébe, melynek külső végét a Sarad EQF 3220 (Sarad GmbH, Németország) berendezéshez csatlakoztattam. A cső folyamatos kihúzásával a kamra különböző pontjairól lehetséges mintavétel a hosszirányú koordináta mentén. 20 cm-enként, összesen 5 pontból vettem mintát. Mivel a mintavevő cső hossza minden esetben változatlan volt, ezért a toron bomlása miatti korrekcióval nem kell számolnunk, hiszen a térbeli homogenitás vizsgálatát a műszer által mért értékek egymással történő közvetlen összehasonlításával végeztem. Mintavételi pontonként 4 percig mértem az aktivitáskoncentrációt a műszerrel, 1 perces ciklusokban, majd a kapott értékeket átlagoltam. Az eredmények a III.1-10. ábrán láthatók.



III.1-10. ábra: A mintavételes térbeli homogenitásvizsgálat eredményei, a mért toronkoncentráció a belépési ponttól mért távolság függvényében (hibasávon az értékek szórása)

Az eredmények alapján szintén az állapítható meg, mint a nyomdetektoros térbeli homogenitásvizsgálat esetében, miszerint a belépési ponttól távolodva a toronkoncentráció csökken. A belépési ponttól 30 cm-re a kezdeti toronkoncentráció 86

%-a, 50 cm-re 84 %-a, 70 cm-re 77 %-a volt mérhető. Ez is megerősíti a korábbi megállapítást, miszerint a kalibráció és a mintavétel elvégzésére a 30-50 cm-es mélység javasolt.

### **III.1.5. Aeroszol koncentráció és részecskeméret-eloszlás szabályozása**

A kamrát a későbbiekben alkalmassá kell tenni leányelemmérő monitorok kalibrálására is, ezért a kamrafejlesztés további céljával tűztem ki az aeroszol koncentráció és részecskeméret-eloszlás szabályozásának megoldását a kamrában.

A toron bomlásakor keletkező szilárd leányelemek – úgy, mint a radon esetében – a levegő aeroszol részecskéinek különböző frakcióin tapadnak meg. A 100 nm-nél nagyobb részecskék (tapadt frakció) a levegőből mechanikusan kiülepedhetnek, a felületeken lerakódhatnak, míg az 5 nm-nél kisebb részecskék (nem tapadt frakció) adszorpciója esetén főként az elektrosztatikus folyamatok játszanak szerepet. A két frakció közötti mérettartományt klaszter frakciónak nevezzük. Ennek szerepe a bomlástermékek adszorpciója esetén nem jelentős [124]. Az egyes frakciók eltérő adszorpciós viselkedése az egészségügyi hatásukban is különbségeket okoz. Míg a kisméretű részecskék (< 100 nm) nem képesek megtapadni a hörgők felületén, és kilégzéskor távoznak, addig a nagyobb méretűek (> 100 nm) a tüdőben lerakódhatnak, felhalmozódhatnak. A lerakódások mechanizmusa különböző tüdőmodellekkel írható le. Ezekkel a folyamatokkal, valamint az aeroszolokhoz tapadt bomlástermékek által okozott sugárterhelés meghatározásával számos tanulmány foglalkozik [62].

Az aeroszol részecskék előállítására TSI 3079 aeroszol generátort alkalmaztam (III.1-11. ábra) (TSI Inc., USA). A műszer egy oldat atomizálásával képes polidiszperz aeroszol előállítására. A részecskék koncentrációja a térfogatáram változtatásával  $10^8$  db  $\text{cm}^{-3}$  értékig szabályozható. A generátor által előállított részecskék eloszlásának maximuma a 0,2 – 0,3  $\mu\text{m}$  mérettartományba esik az alkalmazott atomizáló oldattól függően. Jelen esetben DEHS (di-etil-hexil-sebacat) oldatot alkalmaztam.

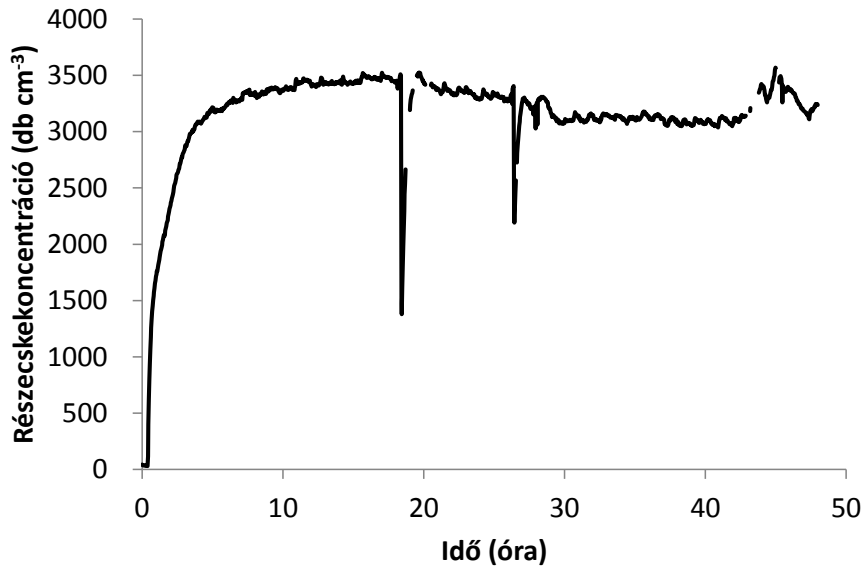


*III.1-11. ábra: TSI 3079 aeroszol generátor*

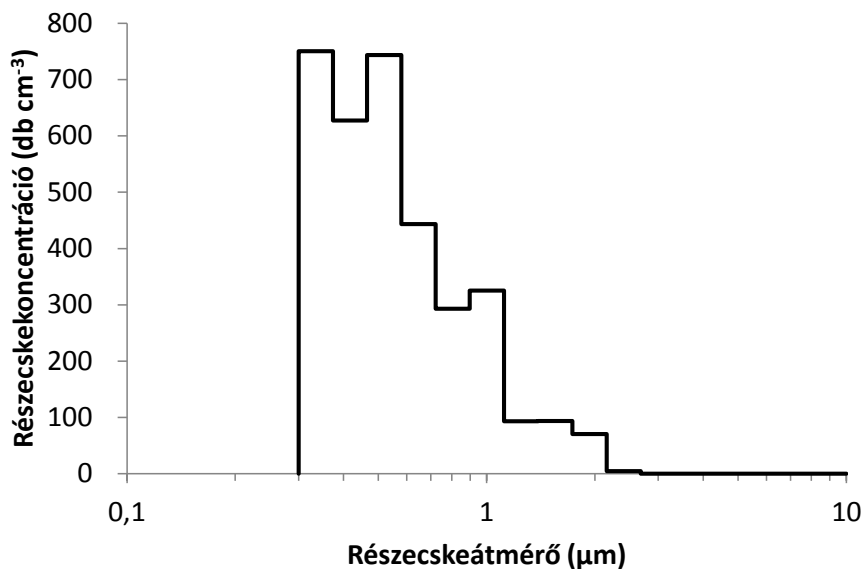
A részecskekoncentráció meghatározása  $0,015 - 0,3 \mu\text{m}$  mérettartományban a Kanomax 3800 kondenzált részecskeszámláló berendezéssel (Kanomax USA Inc., USA), míg  $0,3 - 10 \mu\text{m}$  mérettartományban a TSI 3330 optikai részecskeméret-eloszlás mérő berendezéssel történt (III.1-12. ábra) (TSI Inc., USA). A készülékek által mért adatokból készített koncentráció és részecskeméret-eloszlás diagramok a III.1-13. és III.1-14. ábrákon láthatók.



*III.1-12. ábra: Kanomax 3800 kondenzált részecskeszámláló (balra) és TSI 3330 optikai részecskeméret-eloszlás mérő (jobbra)*



III.1-13. ábra: A TSI 3330 műszerrel mért részecskekoncentráció a kalibráló kamrában a TSI 3079 aeroszol generátor alkalmazása



III.1-14. ábra: A 0,3 – 10 μm mérésstartományba eső részecskék méreteloszlása a kalibráló kamrában a TSI 3079 aeroszol generátor alkalmazása esetén

A mérés 48 órán keresztül zajlott. A III.1-10. ábrán látható, hogy a 0,3 – 10 μm méretű részecskék koncentrációja kb. 12 óra elteltével éri el a telítési értéket, majd stabilizálódik (5 óra mérési eredményeinek átlaga:  $3445 \text{ db cm}^{-3}$ , szórása:  $27 \text{ db cm}^{-3}$ ). A mérés során az aeroszolgenerátort kérszer rövid időre leállítottam (minimum a diagramon 18 és 26 óránál). A 0,015 – 0,3 μm méretű részecskék átlagkoncentrációja –

az egyensúly beállta után (kb. 12 óra) – a Kanomax 3800 készülék mérési eredményei alapján  $5050 \text{ db cm}^{-3}$ . Ennek a  $0,1 \text{ }\mu\text{m}$  alatti része a nem tapadt és klaszter frakció, melyekhez nem kötődnek a szilárd bomlástermékek,  $0,1 \text{ }\mu\text{m}$  feletti része a tapadt frakció, mely esetén a fizikai adszorpció a jellemző. A  $0,3 - 1 \text{ }\mu\text{m}$  mérettartományú frakció méreteloszlása a III.1.11. ábrán látható. Itt az egyes részfrakciók közül a  $0,3 - 1 \text{ }\mu\text{m}$  mérettartomány van jelen jelentősebb koncentrációban ( $293 - 750 \text{ db cm}^{-3}$ ). Az  $1 - 2 \text{ }\mu\text{m}$  közötti rész koncentrációja a  $70 - 94 \text{ db cm}^{-3}$  tartományba esik, míg a  $2 \text{ }\mu\text{m}$  feletti rész gyakorlatilag elhanyagolható ( $< 5 \text{ db cm}^{-3}$ ).

Összességében elmondható, hogy az alkalmazott aeroszol generátor  $2 \text{ }\mu\text{m}$  méretig képes részecskéket előállítani. Ezek között nagy mennyiségben jelen van a nem tapadt és a klaszter frakció, de a  $0,1 \text{ }\mu\text{m}$  feletti frakció koncentrációja is jelentős.

### **III.1.6. A kalibráló kamra javasolt paramétere**

A Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében korábban végzett kamrakialakítás során a NIRS kalibráló kamrát vettük alapul [1]. A műszerek könnyebb elhelyezhetősége miatt ennek méretét kicsivel megnöveltük és egy  $0,2 \text{ m}^3$  térfogatú kalibráló teret alakítottunk ki. Az előzetes kísérletek alapján toronkalibrálás céljára ez a kamra megfelelőnek bizonyult. Ekkora térfogatban van elég hely a kamrában a mérőműszerek kényelmes elhelyezésére, a kamra mérete viszont tovább nem növelhető, mert nagyobb kamrában nem tud homogén koncentráció kialakulni a toron rövid felezési ideje miatt. A kényelmes kezelhetőség miatt a hengeres kamrát fekvő pozícióban helyeztem el, melynek előlapja leemelhető – itt történik a műszerek kamrába helyezése. A kamrában homogenizálás céljából ventilátort kell elhelyezni, valamint elektromos aljzatot kell kialakítani a műszerek elektromos ellátásának biztosítására. Az RRI kamrában ezen kívül egy polcot helyeztem el a műszerek kényelmesebb elhelyezésére.

A toronkoncentrációt a kamrán kívül elhelyezett toronforrással biztosítjuk. A toronforráson a levegőt külső pumpa segítségével vezetjük keresztül  $4 \text{ l min}^{-1}$  térfogatárammal, majd a gázáram a kamra előlapján elhelyezett szelepen át – a páratartalom-szabályozó rendszeren keresztül – lép be a kamrába. A kamra hátlapján furatot kell kialakítani, melyen keresztül a felesleges levegő távozik a kamrából (nyomáskiegyenlítés). A szelepeket és furatokat kétkomponensű ragasztóval tömíteni

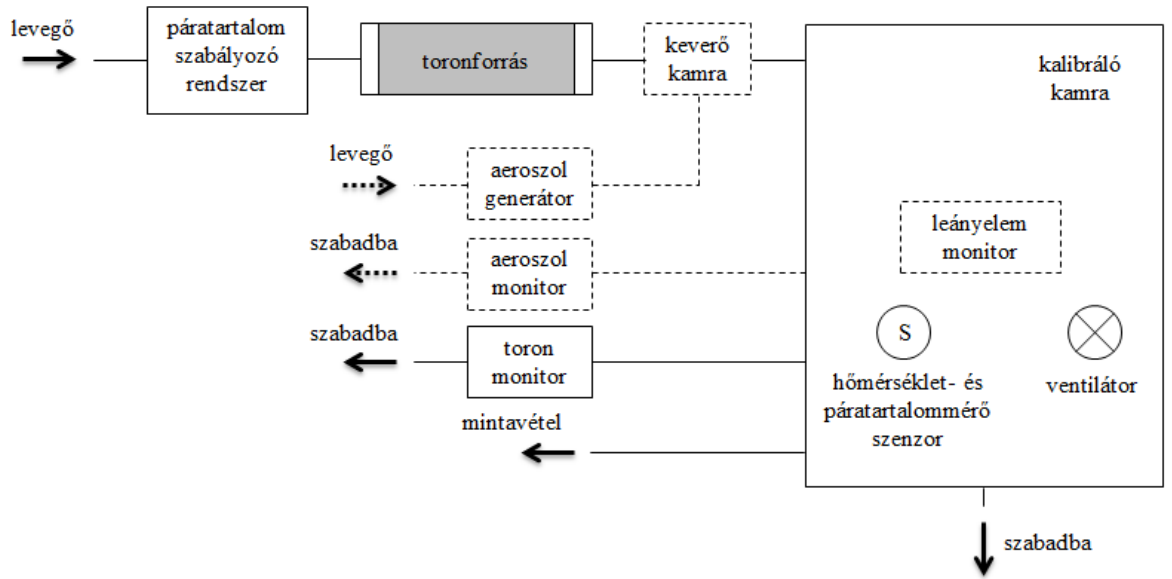
kell. A kamra előlapjának zárását gumitömítéssel oldottam meg. A megfelelő tömítését és a toronkoncentráció térben homogén eloszlását ellenőrizni kell.

A hőmérséklet szabályozását és monitorozását a kamrában biztosítani kell. Erre a célra külső klímaberendezés és kereskedelmi forgalomban kapható meteorológiai szenzor megfelelő. Az RRI kamra esetén a hőmérséklet 10 – 30 °C tartományban szabályozható az alkalmazott klímaberendezés segítségével.

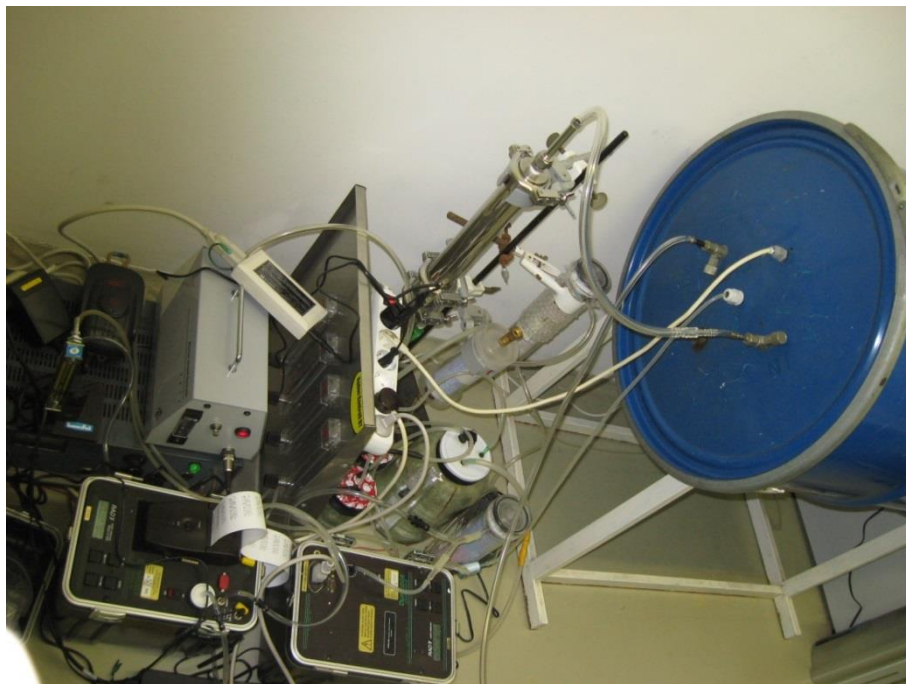
Meg kell oldani a toronforráson átáramoltatott levegő páratartalmának szabályozását és mérését. A szabályozást a speciálisan erre a célra kialakított, nedvességmegkötő és buborékoltató egységekből álló páratartalom-szabályozó rendszer segítségével hajtottam végre. Az RRI kamra esetén a páratartalom 10 – 90 % tartományban szabályozható. A páratartalom mérése kereskedelmi forgalomban kapható meteorológiai szenzor segítségével megvalósítható.

Annak érdekében, hogy a kamra leányelemkalibrációra is alkalmas legyen, aeroszolkoncentráció és részecskeméret-eloszlás szabályozó és monitorozó rendszert kell alkalmazni. Ehhez az RRI kamra esetében TSI 3079 aeroszol generátort, valamint Kanomax 3800 kondenzált részecskeszámláló és TSI 3330 optikai részecskeméret-eloszlás mérő berendezéseket használtam. Az alkalmazott aeroszol generátorral és atomizáló oldattal 2 µm mérettartományig sikerült részecskéket előállítani. Az átlagos részecskekoncentráció 3445 db cm<sup>-3</sup> volt, amely a generátorral 10<sup>8</sup> db cm<sup>-3</sup> értékig szabályozható.

A kalibráló kamra felépítésének vázlatát a III.1-15. ábra, megvalósítását a III.1-16. ábra szemlélteti.



III.1-15. ábra: A kalibráló kamra javasolt felépítése (szaggatott vonallal: opcionális elemek leányelem-kalibráció esetén)



III.1-16. ábra: A kialakított kalibráló kamra leányelem-kalibráció során

## III.2. Referencia eljárás

A kalibrációs protokoll megalkotásának fontos eleme a referencia eljárás megadása. E során a feladat egy olyan műszer vagy eljárás kiválasztása, melyhez a többi

alkalmazott műszer vagy eljárás eredménye viszonyítható. Referencia eljárásnak célszerű olyan, egyszerű fizikai elven alapuló módszert választani, amely elsődleges referenciának tekinthető, tehát a mérés eredménye SI mértékegységekre könnyen visszavezethető. Toronmérés esetében – szakirodalmi adatok alapján – elsősorban a szcintillációs számlálás [3], illetve a gamma-spektrometria [4] jöhet szóba. Ezek a módszerek az intézetünkben rendelkezésünkre álló hitelesített radonforrás, mint referencia etalon mérésén keresztül validálhatók, míg a bonyolultabb, általában félvezető detektorokat alkalmazó aktív monitorok esetében ez közvetlenül nem valósítható meg.

A folyamat első lépéseként megvizsgáltam a szakirodalomban található különféle gamma-spektrometriás és szcintillációs toronmérési technikákat, majd műszeres összeméréseket végeztem a toronkamrában, melynek célja a rendelkezésünkre álló toronmérő berendezések összehasonlítása. Az eredmények alapján javaslatot teszek a lehetséges referencia műszerre.

### **III.2.1. Toronkoncentráció meghatározása félvezető detektoros gamma-spektrometrián alapuló emanációméréseken keresztül**

A kísérleteket a németországi PTB intézetben alkalmazott módszer alapján végeztem [2]. Eszerint az elektrodepozícióval leválasztott Th-228 forrást egy kamrába rakják, melyet HPGe detektoros gamma-spektrométerre helyeznek. A kamrát összeköttetésbe hozzák egy ismert térfogatú térrésszel, melybe egy pumpa segítségével a keletkező torongázt áthajtják. Így a forrás felől az exhalálódott toront folyamatosan elvezetik a kamrából, ezért – a korábban egyensúlyban lévő – Ra-224 és Pb-212 közötti szekuláris egyensúly megbomlik, és idővel a Pb-212 aktivitásában csökkenés tapasztalható (a Pb-212 felezési ideje 10,6 óra). A „maradék” Pb-212 aktivitás a forrásban maradt („nem exhalálódott”) toronból keletkezik, így az aktivitáscsökkenés az emanációval arányos. A „maradék” Pb-212 aktivitásból és a Ra-224 aktivitásából (ami a Th-228 aktivitással megegyezik, hiszen ott nem bomlik meg a szekuláris egyensúly) az emanációs tényező meghatározható.

Az aktivitások meghatározásához a Pb-212 radionuklid 239 keV, valamint a Ra-224 radionuklid 241 keV energiájú csúcsait használtam, melyeket a nagy felbontású HPGe detektor megfelelően képes szétválasztani (függelék F.2-1. ábrája), viszont az



egymáshoz közel eső energiák miatt a számításoknál a detektor hatásfokát nem kell figyelembe venni (a két energiaértéken azonosnak vehető).

A toron emanációs tényezője tehát a következő összefüggés szerint számítható:

$$\varepsilon_{Tn} = 1 - \frac{I_{Pb-212}^M - I_{Pb-212}^H}{I_{Ra-224}^M - I_{Ra-224}^H} \cdot \frac{p_{\gamma,Ra-224}}{p_{\gamma,Pb-212}} \quad (\text{III.2-1})$$

ahol  $I_{Pb-212}^M$  a Pb-212 239 keV energiájú gamma-vonalának intenzitása a mintában;  $I_{Pb-212}^H$  a Pb-212 239 keV energiájú gamma-vonalának minta nélkül mért háttérintenzitása;  $I_{Ra-224}^M$  a Ra-224 241 keV energiájú gamma-vonalának intenzitása a mintában;  $I_{Ra-224}^H$  a Ra-224 241 keV energiájú gamma-vonalának minta nélkül mért háttérintenzitása;  $p_{\gamma,Ra-224}$  a Ra-224 241 keV energiájú gamma-bomlásának valószínűsége (%);  $p_{\gamma,Pb-212}$  a Pb-212 239 keV energiájú gamma-bomlásának valószínűsége (%).

Az emanációs tényező alapján a referencia térfogatban kialakuló toronkoncentráció kBq m<sup>-3</sup> egységben a következőképpen határozható meg:

$$c_{Tn} = \frac{A_{Th-228} \cdot \varepsilon_{Tn}}{V} \quad (\text{III.2-2})$$

ahol  $A_{Th-228}$  a forrás Th-228 aktivitása (kBq);  $V$  a referencia térfogat (m<sup>3</sup>).

A módszer alapelvét felhasználva teszteltem a gamma-spektrometriás eljárást a kerámiaforrás esetén. A kerámiagolyókat akkumulációs kamrába helyeztem, az akkumulációs kamrát pedig a HPGe detektorra raktam. Az akkumulációs kamrát a Sarad EQF 3220 berendezéshez kapcsoltam, majd a készülék belső pumpájával folyamatosan elvontam a toront a rendszerből.

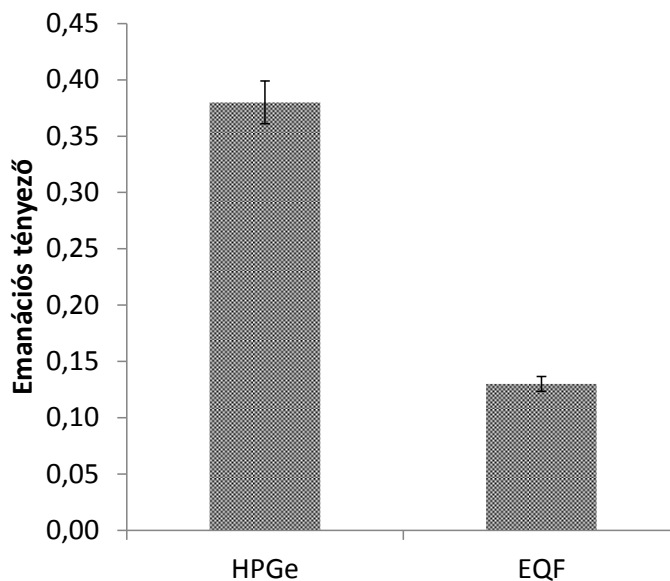
Az emanációs tényezőt meghatároztam egyrészt a fent bemutatott, másrészt az akkumulációs módszerrel a következő összefüggéssel:

$$\varepsilon_{Tn} = \frac{c_{Tn} V_A m_K}{m_{Th} S_{Th} m_F} \quad (\text{III.2-3})$$

ahol  $C_{Tn}$  a műszer által mért toron-aktivitáskoncentráció (kBq m<sup>-3</sup>);  $V_A$  az akkumulációs tér térfogata (0,0014 m<sup>3</sup>);  $m_K$  a forráskészítéshez felhasznált kerámia tömege (g);  $m_{Th}$  a forráskészítésnél felhasznált kerámiához adott tórium-nitrát tömege

(g);  $S_{Th}$  a természetes tórium-nitrát fajlagos aktivitása ( $3,93 \text{ kBq g}^{-1}$ );  $m_F$  a kiégetett kerámiaforrás tömege (g).

A módszer akkor működik megfelelően, ha a kétféleképpen meghatározott emanációs tényező megegyezik. Az eredmény a III.2-1. ábrán látható. A gamma-spektrum alapján számolt emanációs tényező 0,38, míg az akkumulációs módszerrel számított 0,13.



III.2-1. ábra: A HPGe gamma-spektrometriás méréssel és a Sarad EQF 3220 műszerrel (akkumulációs módszerrel) meghatározott emanációs tényezők összehasonlítása

Az emanációs tényezők közötti relatíve nagy eltérést az okozza, hogy esetünkben az elkészült kerámiaforrás esetén nem áll fenn a szabadexhaláció jelensége, mivel a kerámiagolyók zárt műanyaghengerben helyezkednek el. Ezért emanációs tényező helyett csupán egy „kihajtási tényezőt” tudunk meghatározni, ami azt jellemzi, hogy az összes keletkező toronnak hányad részét tudjuk a hengerből a referencia térfogatba áthajtani.

A kihajtási tényező meghatározásához szükséges a forrásban lévő Pb-212 és Ra-224 intenzitásának meghatározása szekuláris egyensúly esetén. A kísérlethez  $110 \text{ kBq Th-232}$  aktivitású toronforrást használtam. Ebben az esetben a detektor felbontása már nem volt elég nagy a két csúcs szétválasztásához, így csupán a Pb-212 és Ra-224 együttes mennyisége határozható meg. Ezt követően sűrített levegővel folyamatosan kihajtottam

a forrásból a torongázt, és megvártam, míg a Pb-212 felesleg lebomlik (néhány nap). Ezt követően újból meghatároztam a két izotóp együttes intenzitását. A kihajtási tényezőt a következőképpen definiáltam:

$$\kappa = \frac{I_E}{I_K} \quad (\text{III.2-4})$$

ahol  $I_E$  a kb. 240 keV energián mért intenzitás szekuláris egyensúly esetén;  $I_K$  a kb. 240 keV energián mért intenzitás a torongáz kihajtását követően.

A kihajtási tényező ez esetben 0,046, melyből becsülhető a kalibráló kamrában kialakítható toronaktivitás-koncentráció, amely kb. 25 kBq m<sup>-3</sup> értéknek adódott. (Korábbi gamma-spektrometriás mérések alapján a forrás Th-232 aktivitása 110,67 kBq, a kalibráló kamra térfogata 0,2 m<sup>3</sup>.) Ez összhangban van azzal a tapasztalatommal, hogy ezzel a forrással 20-25 kBq m<sup>-3</sup> toronkoncentráció alakítható ki a kalibráló kamrában.

A kísérletek alapján megállapítható, hogy mivel a kerámiaforrás kialakítása nem felel meg a szabadexhaláció feltételeinek, a módszer az eredeti formájában csupán előzetes, tájékoztató jellegű mérésre használható, viszont erre a célra más, egyszerűbb módszer is hatékonyan alkalmazható (pl. akkumulációs módszer). Az eljárás elvét alapul véve a módszer alkalmassá tehető a kész kerámiaforrás esetében is a kalibráló kamrában kialakítható toronaktivitás-koncentráció becslésére, bár ez a detektor nem elegendően nagy felbontása miatt szintén csak tájékoztató jellegű információt szolgáltat, referencia eljárásként nem használható. Ezen kívül a HPGe detektor alkalmazása folyamatos kalibrációs mérés során – kialakítása miatt – nehézkes, viszont a módszer alkalmazásához elengedhetetlen nagy energiafelbontó-képesség miatt rugalmasabban kezelhető detektortípus (pl. NaI(Tl) szcintillátor) nem alkalmazható erre a célra.

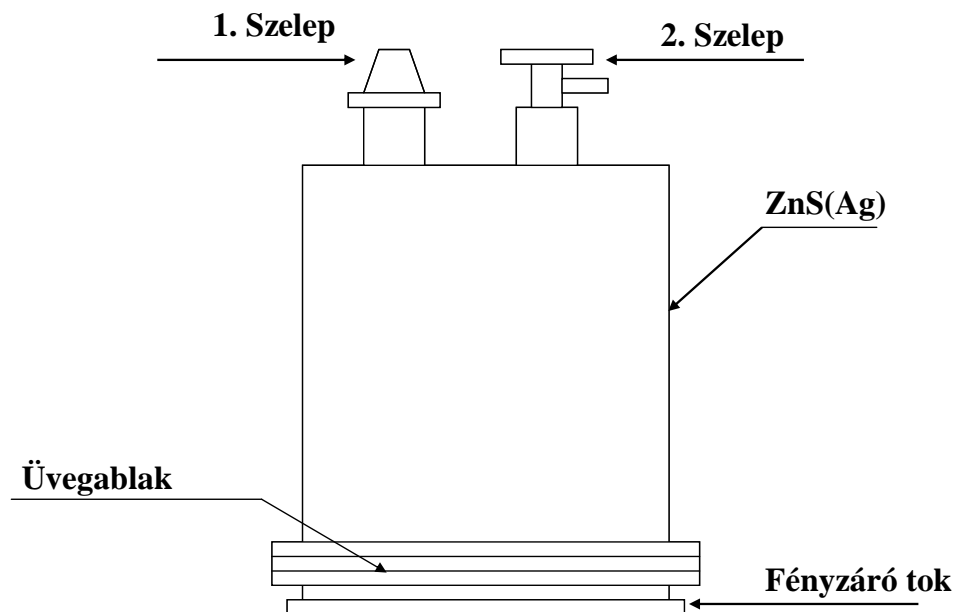
### **III.2.2. Toronkoncentráció meghatározása szcintillációs módszerrel**

Az ezüsttel dopolt ZnS az egyik legrégebben használatos szcintillátor. Transzmissziós hatásfoka igen jó (kb. 20 %). A kisugárzott fény színeképének maximuma 450 nm-nél, kedvező helyen van a fotokatódok számára. Utánvilágítási ideje 0,2 μs. Hátránya, hogy csak polikristályos formában állítható elő. Gyakorlatban a detektor kialakítása olyan, hogy a ZnS(Ag) port vékony rétegben üveglapra ülepítik, és

ezt helyezik a fotoelektron-sokszorozó fotokatódjára. A réteg vastagsága  $20\text{-}30\text{ mg cm}^{-2}$ -nél nem lehet nagyobb, mert akkor optikailag átlátszatlaná válik a kristályszemcséken bekövetkező fénytörés és visszaverődés következtében. Ez a vékony réteg gyakorlatban csak  $\alpha$ -részecskék, protonok, hasadási termékek detektálására alkalmas. Elektronok és  $\gamma$ -fotonok csak kevés szcintillációt keltenek a kis energiaabszorpció miatt [96].

A ZnS(Ag) látható fény hatására is lumineszkál. Az ilyen típusú lumineszcenciának hosszú idejű utánvilágítási komponense is van, ezért szobai világítás mellett szerelt detektort a fénytől való teljes elzárást követően 2-3 óráig nem szabad használni, mert az utánvilágítás erősen zavaró [96].

A ZnS(Ag) szcintillátoranyagot leggyakrabban az ún. Lucas szcintillációs cellában alkalmazzák, melyet elterjedten alkalmaznak toronmérésre [3, 108-111]. Az általam használt Lucas-cella egy szelepekkel ellátott zárt fémedény, melynek a belső felületén található a por formájú ZnS(Ag) szcintillátoranyag. A mérendő közeget az inert anyaggal (pl. nitrogéngáz) áttisztított és kivákuumozott mérőcellába juttattam, melyet fotoelektron-sokszorozóhoz csatlakoztattam, melynek segítségével a szcintilláció során keletkező felvillanásokat detektáltam. A Lucas-cella felépítését a III.2-2. ábra szemlélteti [29].



III.2-2. ábra: A Lucas-cella vázlatja [29]

A toron- és radonaktivitás egymás melletti meghatározására különféle eljárások alkalmazhatók [125, 126]. Ezeket alapul véve a kísérletek során a kétszeri számlálós eljárást (two counts method, TCM), és egy integrális számlálási módszert alkalmaztam.

A TCM eljárás során Pylon AB-5 számlálóberendezést és Pylon 300A típusú Lucas-cellát alkalmaztam (Pylon Electronics Inc., Kanada) (III.2-2. ábra). Az eljárást a következő lépések szerint hajtottam végre:

1. Impulzusszámlálás a mintavételt követő 20 – 120 s intervallumban;
2. Impulzusszámlálás a mintavételt követő 600 – 900 s intervallumban.

A toron- és radonkoncentráció a mért beütésszámok alapján kiszámítható.

Az integrális eljárás során Lucas-cellával összekapcsolt NDI intelligens szcintillációs detektort alkalmaztam (Gamma Műszaki Zrt., Magyarország) (III.2-3. ábra). 1000 s-ig mértem a beütésszámot 1 s integrálási idővel. Összehasonlításképpen az NDI rendszerrel is elvégeztem a TCM mérést.



*III.2-3. ábra: Pylon AB-5 számlálóberendezés Pylon 300A típusú Lucas-cellával (balra) és Lucas-cellával összekapcsolt NDI intelligens szcintillációs detektor (jobbra)*

### III.2.2.1. A számítás bemutatása

#### Radonkoncentráció meghatározása

A 2. időintervallumban kapott nettó impulzus egyrészt a cellában lévő radongáz aktivitásából, másrészt a bomlás során keletkező Po-218 és Po-214 aktivitásából tevődik össze. Mivel azonban a mérés időpontjában a Po-214 aktivitása még elhanyagolhatóan kicsi, az impulzusszám a következőképpen egyszerűsödik:

$$I_{2,N} = A_{Rn-222} \eta_{Rn-222} + A_{Po-218} \eta_{Po-218} \quad (\text{III.2-5})$$

ahol  $I_{2,N}$  a 2. időintervallum alatt detektált nettó impulzus (cps) ( $I_{2,N} = I_2 - I_H$ , ahol  $I_2$  a bruttó impulzust,  $I_H$  a háttér impulzust jelenti cps értékben);  $A_{Rn-222}$  a cellában lévő Rn-222 aktivitása (Bq);  $A_{Po-218}$  a Rn-222-ből keletkezett Po-218 aktivitása a cellában (Bq);  $\eta_{Rn-222}$  és  $\eta_{Po-218}$  a detektor számlálási hatásfoka az adott izotópokra.

Mivel a mérés időpontjában a Rn-222 és a Po-218 között nincs egyensúly, a Po-218 aktivitása a Rn-222 aktivitással az alábbi módon fejezhető ki:

$$A_{Po-218} = \varepsilon(t) A_{Rn-222} \quad (\text{III.2-6})$$

ahol  $\varepsilon(t)$  az egyensúlyi állapotra jellemző időfüggvény.

Egyszerűsítésképpen  $\varepsilon$  értékét az adott időintervallum számtani középértékére vonatkoztatott állandó értéként fejezzük ki:

$$\varepsilon_2 = 1 - e^{t_{\text{átl},2} (\lambda_{Rn-222} - \lambda_{Po-218})} \quad (\text{III.2-7})$$

ahol  $t_{\text{átl},2} = \frac{t_3 + t_4}{2}$ ,  $t_3$  és  $t_4$  a mérési időintervallum kezdő- és végpontja (s),  $\lambda_{Rn-222}$  és  $\lambda_{Po-218}$  az adott izotópok bomlási állandója ( $s^{-1}$ ).

Tehát a cellában lévő radongáz aktivitása a fentiek alapján az alábbi módon fejezhető ki:

$$A_{Rn-222} = \frac{I_{2,N}}{\eta_{Rn-222} + \varepsilon_2 \eta_{Po-218}} \quad (\text{III.2-8})$$

Másrésről az aktivitás időbeni változása az alábbi differenciálegyenlettel írható le:

$$\frac{dA_{Rn-222}}{dt} = A_{Rn-222}^0 e^{-\lambda_{Rn-222} t} \quad (\text{III.2-9})$$

ahol  $A_{Rn-222}^0$  a cellában lévő radonkonaktivitás a mintavételi időpontban (Bq).

Átrendezve és integrálva:

$$A_{Rn-222} = \int_{t_3}^{t_4} A_{Rn-222}^0 e^{-\lambda_{Rn-222} t} dt \quad (\text{III.2-10})$$

Az integrálás megoldása:

$$A_{Rn-222} = \frac{A_{Rn-222}^0}{\lambda_{Rn-222}} (e^{-\lambda_{Rn-222} t_3} - e^{-\lambda_{Rn-222} t_4}) \quad (\text{III.2-11})$$

Az egyenletet átrendezve és a radonaktivitás korábban kifejezett alakját behelyettesítve a keresett kezdeti aktivitás:

$$A_{Rn-222}^0 = \lambda_{Rn-222} \frac{I_{2,N}}{(\eta_{Rn-222} + \varepsilon_2 \eta_{Po-218})(e^{-\lambda_{Rn-222} t_3} - e^{-\lambda_{Rn-222} t_4})} \quad (\text{III.2-12})$$

Ebből a kamrában lévő radonaktivitás-koncentráció kiszámolható:

$$C_{Rn-222} = \frac{A_{Rn-222}^0 \cdot 10^6}{V} \quad (\text{III.2-13})$$

ahol  $C_{Rn-222}$  a radongáz aktivitáskoncentrációja (Bq m<sup>-3</sup>); V a Lucas-cella térfogata (cm<sup>3</sup>).

### Toronkoncentráció meghatározása

Az 1. időintervallumban kapott nettó impulzus egyrészt a cellában lévő radon- és torongáz aktivitásából, másrészt a bomlás során keletkező Po-218 és Po-216 aktivitásából tevődik össze:

$$I_{1,N} = A_{Rn-222} \eta_{Rn-222} + A_{Rn-220} \eta_{Rn-220} + A_{Po-218}^* \eta_{Po-218} + A_{Po-216} \eta_{Po-216} \quad (\text{III.2-14})$$

ahol  $I_{1,N}$  az 1. időintervallum alatt detektált nettó impulzus (cps) ( $I_{1,N} = I_1 - I_H$ , ahol  $I_1$  a bruttó impulzust,  $I_H$  a háttér impulzust jelenti cps értékben);  $A_{Rn-222}$  a cellában lévő Rn-222 aktivitása (Bq), amely azonos az előzőekben bemutatott módon meghatározott radonaktivitással (mivel a mérési idő alatt a radon viszonylag hosszú felezési ideje miatt állandónak vehető);  $A_{Po-218}^*$  a Rn-222-ből keletkezett Po-218 aktivitása a cellában (Bq) (az előzőekben bemutatottakkal analóg módon az 1. mérési intervallum számtani középértékére vonatkoztatott egyensúlyi tényezővel és a radonaktivitással kifejezve:  $A_{Po-218}^* = \varepsilon_1 A_{Rn-222}$ );  $A_{Rn-220}$  a cellában lévő Rn-220 aktivitása (Bq);  $A_{Po-216}$  a Rn-220-ból keletkezett Po-216 aktivitása a cellában (Bq), amely a Po-216 rövid felezési ideje miatt (0,14 s) gyakorlatilag a toronaktivitással egyezik meg ( $A_{Po-216} = A_{Rn-220}$ );  $\eta_i$  a detektor számlálási hatásfoka az adott izotópokra.

A cellában lévő torongáz aktivitása a fenti egyenlet átrendezésével az alábbi módon fejezhető ki:

$$A_{Rn-220} = \frac{I_{2,N} - A_{Rn-222} (\eta_{Rn-222} - \varepsilon_1 \eta_{Po-218})}{\eta_{Rn-220} + \eta_{Po-216}} \quad (\text{III.2-15})$$

Másrésről az aktivitás időbeni változása az alábbi differenciálegyenlettel írható le:

$$\frac{dA_{Rn-220}}{dt} = A_{Rn-220}^0 e^{-\lambda_{Rn-220} t} \quad (\text{III.2-16})$$

ahol  $A_{Rn-220}^0$  a cellában lévő toronaktivitás a mintavételi időpontban (Bq);  $\lambda_{Rn-220}$  a toron bomlási állandója ( $s^{-1}$ ).

Átrendezve és integrálva:

$$A_{Rn-220} = \int_{t_1}^{t_2} A_{Rn-220}^0 e^{-\lambda_{Rn-220} t} dt \quad (\text{III.2-17})$$

Az integrálás megoldása:

$$A_{Rn-220} = \frac{A_{Rn-220}^0}{\lambda_{Rn-220}} (e^{-\lambda_{Rn-220} t_1} - e^{-\lambda_{Rn-220} t_2}) \quad (\text{III.2-18})$$



Az egyenletet átrendezve és a toronaktivitás korábban kifejezett alakját behelyettesítve a keresett kezdeti aktivitás:

$$A_{Rn-220}^0 = \lambda_{Rn-220} \frac{I_{2,N} - A_{Rn-222} (\eta_{Rn-222} - \varepsilon_1 \eta_{Po-218})}{(\eta_{Rn-220} + \eta_{Po-218})(e^{-\lambda_{Rn-220} t_1} - e^{-\lambda_{Rn-220} t_2})} \quad (\text{III.2-19})$$

Ebből a kamrában lévő toronaktivitás-koncentráció kiszámolható:

$$C_{Rn-220} = \frac{A_{Rn-220}^0 \cdot 10^6}{V} \quad (\text{III.2-20})$$

ahol  $C_{Rn-220}$  a torongáz aktivitáskoncentrációja ( $\text{Bq m}^{-3}$ );  $V$  a Lucas-cella térfogata ( $\text{cm}^3$ ).

### III.2.2.2. Az összemérés eredményei

A műszeres összemérés során a fent említett két szcintillációs technika és a rendelkezésünkre álló aktív radon/toron monitorok mérési eredményeit hasonlítottam össze. A használt berendezések (III.2-4. ábra):

- Sarad EQF 3220 (Sarad GmbH, Németország)
- Sarad RTM 2100 (Sarad GmbH, Németország)
- DurrIDGE RAD7 (DurrIDGE Company Inc., USA)

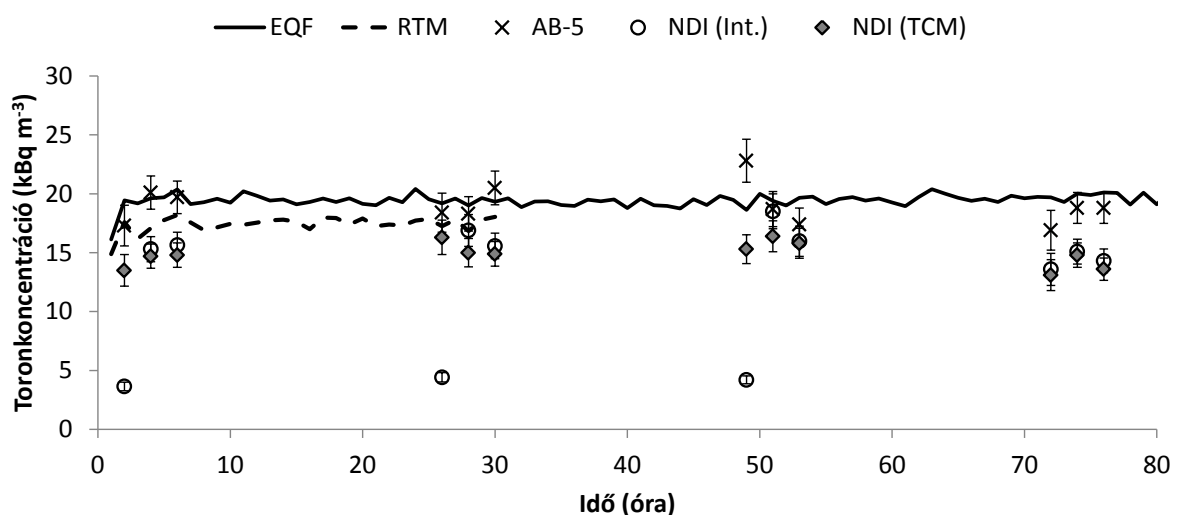


III.2-4. ábra: Sarad EQF 3220 (balra), Sarad RTM 2100 (középen) és DurrIDGE RAD7 (jobbra) készülékek

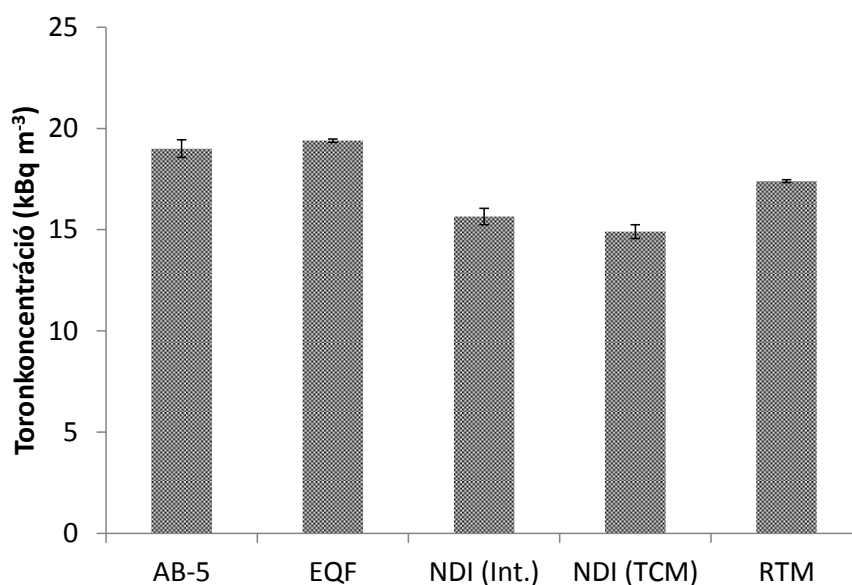
Az összemérést két lépésben valósítottam meg, mivel a Durridge RAD7 készülék kezdetben nem állt rendelkezésre. Első alkalommal a Sarad EQF 3220, Sarad RTM 2200, Pylon AB-5 és NDI berendezéseket használtam. A mérés négy napig tartott, Lucas-cellás mintavétel kétóránként, naponta három alkalommal történt.

A Sarad EQF 3220 berendezés a mérés időtartama alatt beütésszámokat minden órában feljegyezte. A Sarad RTM 2100 készülék technikai okokból csak az első 30 órás periódus alatt rögzítette a beütésszámokat, viszont a következtetések levonására ezek az eredményei is elegendő információt szolgáltatnak. A különböző műszerek által mért aktivitáskoncentrációk a III.2-5. ábrán, míg az átlagos aktivitáskoncentráció értékek a III.2-6. ábrán láthatók. Az összehasonlítás eredményét a III.2-1. táblázatban foglaltam össze.

Az eredmények alapján jó egyezés látható a Pylon AB-5, Sarad EQF 3220 és Sarad RTM 2100 berendezések eredményei között. Az NDI detektorral mért értékek kissé alacsonyabbak. Ez valószínűleg abból adódik, hogy az alkalmazott Lucas-cellák toronmérési hatásfoka nem pontosan ismert, ezért a későbbiekben ennek meghatározása szükséges az eredmények pontosításához. Emellett látható három kiugró érték a diagramon az NDI műszerrel végzett integrális mérés esetében. Ezekben az esetekben a mérés ugyanazzal a cellával történt, a kiugró értékeket így vélhetően a cella hibája eredményezte. Az átlagszámításnál ezeket az értékeket nem vettem figyelembe.



III.2-5. ábra: Az összehasonlított műszerek által mért toronkoncentrációk



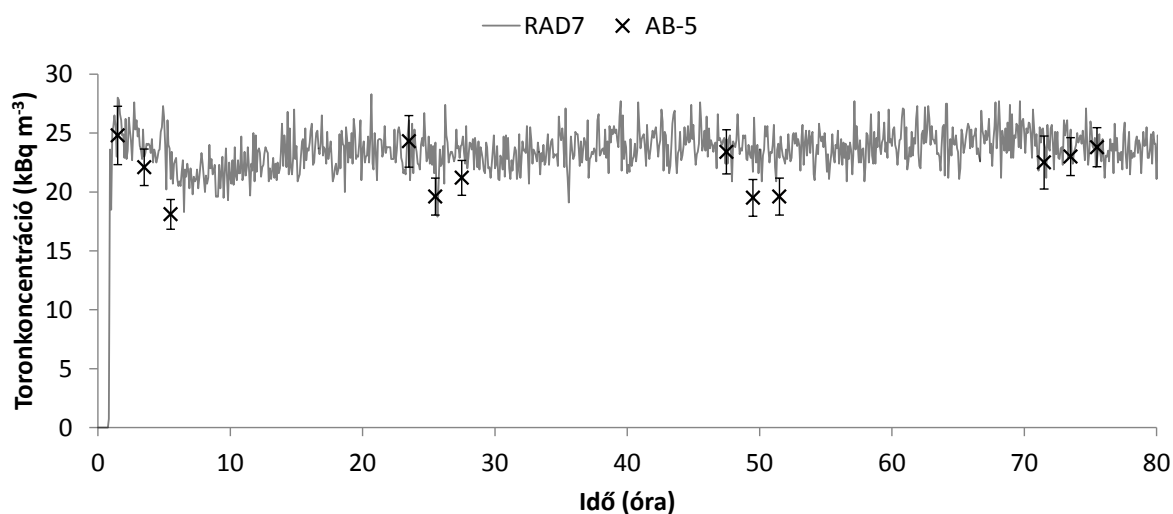
III.2-6. ábra: Az egyes berendezések által mért átlagos toronkoncentráció

III.2-1. táblázat: A Sarad EQF 3220, Sarad RTM 2100, Pylon AB-5 és NDI készülékek összehasonlításának eredményei

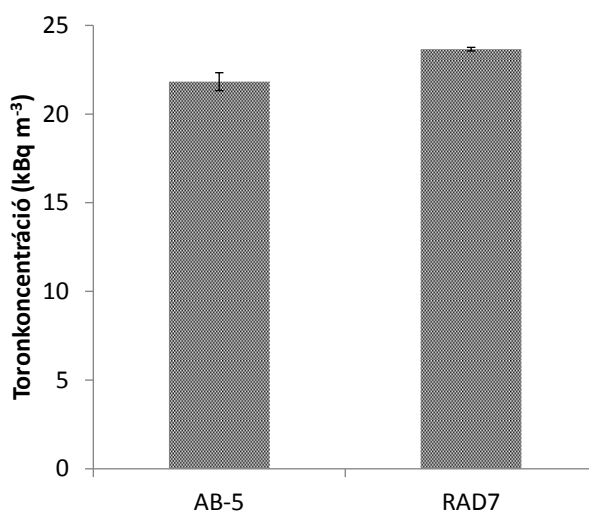
	EQF	RTM	AB-5	NDI (Int.)	NDI (TCM)
Átlag (Bq m <sup>-3</sup> )	19 463 ± 37	17 497 ± 73	18 975 ± 438	15 651 ± 403	14 850 ± 345
Minimum (Bq m <sup>-3</sup> )	18 635 ± 424	16 175 ± 384	16 900 ± 1690	13 584 ± 1358	13 100 ± 1310
Maximum (Bq m <sup>-3</sup> )	20 403 ± 465	18 207 ± 407	22 800 ± 1824	18 511 ± 1481	16 400 ± 1312
Szórás (Bq m <sup>-3</sup> )	387	435	1631	1427	1049

Második alkalommal a DurrIDGE RAD7 és a referencia műszerként javasolandó Pylon AB-5 készülék összemérését végeztem el. A mérést az előzőhöz hasonlóan hajtottam végre. A RAD7 és az AB-5 által mért toronaktivitás-koncentrációk a III.2-7. ábrán, az átlagos aktivitáskoncentrációk pedig a III.2-8. ábrán láthatók. (Az átlagolásnál a RAD7 műszer kezdeti nulla értékei természetesen nem vettem figyelembe.) A RAD7 és AB-5 készülékek összehasonlítását a III.2-2. táblázatban foglaltam össze. Ezek alapján elmondható, hogy a RAD7 mérési eredményei nagyobb szórást mutatnak, mint

a Sarad berendezések eredményei. Ez valószínűleg a rövidebb mérési ciklusból adódik. A RAD7 5 perces ciklussal dolgozik, míg a Sarad műszerek 1 óráig mérik a beütésszámot. Rövidebb mérési idő esetén – a radioaktív bomlás sztochasztikus jellegéből adódóan – nagyobb a mérés bizonytalansága. Ennek ellenére a kétféle technikával kapott eredmények jó egyezést mutatnak, az átlagos értékek közötti eltérés kevesebb, mint 5 %.



III.2-7. ábra: A Durridge RAD7 és a Pylon AB-5 mérési eredményeinek összehasonlítása



III.2-8. ábra: A Pylon AB-5 és a Durridge RAD7 műszerek által mért átlagos toronkoncentráció

III.2-2. táblázat: A Durridge RAD7 és a Pylon AB-5 készülékek összehasonlításának eredményei

	<b>RAD7</b>	<b>AB-5</b>
Átlag (Bq m <sup>-3</sup> )	23 658 ± 758	21 825 ± 517
Minimum (Bq m <sup>-3</sup> )	17 900 ± 408	18 100 ± 1267
Maximum (Bq m <sup>-3</sup> )	28 300 ± 645	24 800 ± 2480
Szórás (Bq m <sup>-3</sup> )	1612	2191

Az eredmények alapján a Pylon AB-5 műszer TCM módszerrel történő méréssel alkalmas lehet referencia készülékként, mivel mindhárom tesztelt aktív berendezés eredményeivel jó egyezést tapasztaltam (az átlagértékek közötti eltérés minden esetben < 10 %). Az összemérés során vizsgált aktív radon/toron monitorokra a referenciaként vett AB-5 eredmények alapján meghatározott százalékos eltérést a III.2-3. táblázat tartalmazza. Látható, hogy a legkisebb eltérés a Sarad EQF 3220 berendezés esetén adódott, ezért a toronkoncentráció folyamatos monitorozásához ez a készülék javasolható.

III.2-3. táblázat: Vizsgált aktív berendezések eredményeinek eltérése a referencia műszer (Pylon AB-5) eredményeihez viszonyítva

<b>Berendezés</b>	<b>Eltérés (%)</b>
Sarad EQF 3220	- 2 %
Sarad RTM 2100	+ 9 %
Durridge RAD7	- 5 %

### III.2.3. Javasolt referencia eljárás

Referencia eljárásként szcintillációs és gamma-spektrometriás eljárásokat teszteltem. Az eredmények alapján megállapítottam, hogy az alkalmazott kerámiaforrás esetén a gamma-spektrometriás mérés nem célravezető. Referencia módszerként ZnS(Ag) szcintillátoranyaggal bevont cellával (Lucas-cella) történő mintavétel, majd a kétszeri impulzusszámlálásos módszer (two counts method, TCM) szerinti beütésszámlálás

ajánlott. Az RRI kamra esetében alkalmazott mérőműszer a Pylon AB-5 monitor 300A típusú Lucas-cellával.

A mintavételt megelőzően a Lucas-cellát inert nitrogéngázzal telítjük, majd meghatározzuk a cella háttérét. Ezután vákuumszivattyú segítségével vákuumot hozunk benne létre. A mintavétel közvetlenül a kalibráló kamrából történik. A kamra erre a célra kialakított szelepéhez műanyagcsövet csatlakoztatunk, melyet szűrővel látunk el az aeroszol részecskék eltávolítására. A cső másik végéhez csatlakoztatjuk az AB-5 berendezéshez kapcsolt Lucas-cellát, majd megnyitjuk a cella szelepét, majd a kamra szelepét. A beütésszámokat a következő protokoll szerint rögzítjük:

1. Impulzusszámlálás a mintavételt követő 20 – 120 s intervallumban
2. Impulzusszámlálás a mintavételt követő 600 – 900 s intervallumban

A toron- és radonkoncentráció meghatározása a kapott beütésszámokból a III.2.2.1. fejezetben bemutatott módon történik.

### **III.3. Forrásfejlesztés**

Kísérleteket végeztem az optimális forráskészítési eljárás kiválasztása céljából, melyek során kerámia- és gázharisnya-alapú forrásokat vizsgáltam. Radonmentesítésre különböző kémiai szeparációs technikákat teszteltem, mely során az aktínium vagy tóriumizotópok elválasztása volt a cél. A továbbiakban ezeket ismertetem részletesen.

#### **III.3.1. Kerámiaalapú toronforrások**

A Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében jelenleg három, különböző aktivitású toronforrás áll rendelkezésre. Ezek a kamrában végzett előzetes kísérletekhez ugyan megfelelőek voltak, azonban a kalibrációhoz több, különböző aktivitású toronforrás készítésére, és azok tulajdonságainak a kamra paramétereire gyakorolt hatásának vizsgálatára van szükség. Ezek során feltártam a forrás anyagának tulajdonságai és a kialakuló toronemanáció közötti összefüggéseket. Ez komplex mérési módszerrel valósítható meg, amely magába foglalja az alkalmazott anyagok anyagszerkezeti tulajdonságainak (porozitás, fajlagos felület stb.) meghatározását, illetve a torongáz emanációjának és exhalációjának mérését.

Munkám során 27 féle toron referencia anyagot készítettem. Mátrixanyagként három eltérő összetételű kerámiatípust használtam, három különböző tóriumtartalommal. A masszából golyókat formáztam, majd három különböző hőmérsékleten (200, 600, 900 °C) hőkezelttem. A minták elemösszetételének meghatározását röntgendiffrakciós módszerrel, pórusméret-eloszlását nitrogén adszorpciós és higanypenetrációs módszerrel végezték. A források toronemanáló-képességét akkumulációs módszerrel határoztam meg. Az eredmények alapján következtetések vonhatók le a vizsgált paraméterek toronemanációra gyakorolt hatásával kapcsolatban, melyek alapján a gyártási paraméterekre javaslat tehető.

### ***III.3.1.1. Referencia anyag készítése***

A referencia anyagok készítéséhez három eltérő kémiai összetételű kerámiatípust használtam. Három különböző tórium-nitrát koncentrációjú oldatot készítettem. Ezekhez 25 ml-es mérőlombikba bemértem kb. 3, 6 és 9 g (analitikai mérlegen pontosan lemért) egyensúlyi összetételű, „öreg” (> 50 éves) tórium-nitrátot. Az így elkészített oldatok tórium tartalma rendre 20, 40 és 60 mg g<sup>-1</sup>. A kerámiaporból kb. 15 g-ot analitikai mérlegen pontosan lemértem, majd a megfelelő koncentrációjú tórium-nitrát oldatból 2,5 ml-t adtam hozzá. Ezután a keveréket jól formázható masszává kevertem, majd ebből kb. 2 mm átmérőjű golyókat formáztam. Az így elkészített golyókat három különböző hőmérsékleten – 200, 600, 900 °C – hőkezelttem. Minden típusból inaktív – tórium-nitrát oldat helyett desztillált vizet tartalmazó – mintát is készítettem az anyagszerkezeti vizsgálatokhoz.

### ***III.3.1.2. Elemösszetétel és pórusméret-eloszlás meghatározása***

A röntgendiffrakciós vizsgálatot a Pannon Egyetem Szilikát- és Anyagmérnöki Tanszékén hajtották végre. A röntgendiffraktogramok felvétele egy Philips PW 1050/25 típusú berendezéssel történt (CuK $\alpha$  sugárzás 40 kV, 25 mA).

A 100 nm alatti pórusok meghatározásához egy Micromeritics ASAP 2000 típusú berendezést használtak. A vizsgálandó mintából 1-2 g-ot mértek be, majd a minta pórusainak a felületén megkötött gázok eltávolítása érdekében 100 °C-ra hevítve, vákuum ( $P < 0,75$  mmHg) segítségével eltávolították a kötött gázokat. Az adszorpciós

és deszorpciós izotermákat cseppfolyós nitrogén segítségével vették fel. A fajlagos felületet, valamint a mikroporozitást a BET-elmélet alapján számolták [116, 117].

A 100 nm feletti pórusokat egy SMH6 típusú higanyos poroziméterrel határozták meg. A mérést zavaró és kötött gázok eltávolítása szintén vákuum ( $< 0,01$  mmHg) segítségével történt, szobahőmérsékleten. A mintatartóba kb. 5 g minta került bemérésre. A mérőedényt higannyal feltöltve, a nyomás függvényében (0-750 000 mmHg tartományban) mérték a kapillárisban a higanyszint csökkenését, és a kapott eredményekből számították a pórustérfogatot [116, 118, 119].

### ***III.3.1.3. Toronemanáció meghatározása akkumulációs módszerrel***

Az akkumulációs módszer akkor használható az emanációs tényező közvetlen megállapítására, ha a minta paraméterei olyanok, hogy teljesül a szabadexhaláció feltétele [116]. Ennek értelmében az emanálódott és az exhalálódott gázmennyiség azonos. Toron esetében – a rövid felezési idő következtében – néhány perc alatt beáll a telítési aktivitáskoncentráció (akkumulációs periódus), amely az emanációs tényezővel közvetlenül arányos.

Az akkumulációs módszer mérési elrendezése a III.3-1. ábrán látható. Kb. 15 g mintát a mérést megelőzően szelepekkel ellátott műanyag hengerbe helyeztem, majd gumicsővel vákuumszivattyúhoz csatlakoztattam. Vákuum segítségével eltávolítottam a pórusokban felhalmozott radon- és torongázt. Ezután a mintát műanyag mintatartóba töltöttem, majd az akkumulációs kamrába helyeztem. Az akkumulációs kamra ventilátorral van ellátva a toronkoncentráció homogenizálása céljából. Az akkumulációs tér toronkoncentrációját Sarad RTM 2100 (Sarad GmbH, Németország) műszerrel monitoroztam. A kamra két szelepe műanyagcsövekkel csatlakoztatható a műszer be- és kilépési pontjához. A belépő ágba szűrőt iktattam a szilárd leányelemek kiszűrésére. Az így kialakuló akkumulációs tér – amely az akkumulációs kamra, a csövek és a műszer mérőkamrájának együttes térfogata –  $1400 \text{ cm}^3$ . A mérőműszeren 1 perces mérési ciklust alkalmaztam, és 15 percig mértem az aktivitást. A toronkoncentráció néhány perc elteltével állandósul, így a számításoknál az utolsó 10 perc mérési eredményeit vettem figyelembe. A műszer kijelzőjén közvetlenül leolvasható a mért toronaktivitáskoncentráció  $\text{kBq m}^{-3}$  egységben. Ebből az emanációs tényező a következő összefüggéssel számolható:



$$\varepsilon_{Tn} = \frac{C_{Tn} V_A m_K}{m_{Th} S_{Th} m_F} \quad (\text{III.3-1})$$

ahol  $C_{Tn}$  a műszer által mért toron-aktivitáskonzentráció ( $\text{kBq m}^{-3}$ );  $V_A$  az akkumulációs tér térfogata ( $0,0014 \text{ m}^3$ );  $m_K$  a referencia anyag készítéséhez felhasznált kerámia tömege (g);  $m_{Th}$  a kerámiához adott tórium-nitrát tömege (g);  $S_{Th}$  a természetes tórium-nitrát fajlagos aktivitása ( $3,93 \text{ kBq g}^{-1}$ );  $m_F$  a kiégetett kerámia referencia anyag tömege (g).



III.3-1. ábra: Akkumulációs módszer mérési elrendezése

#### III.3.1.4. A kerámiaforrásokkal végzett vizsgálatok eredményei

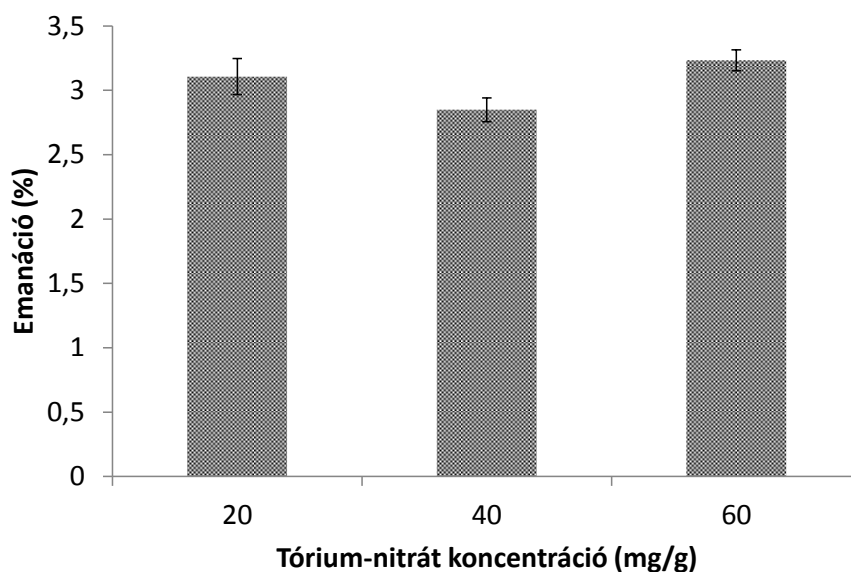
Az akkumulációs módszerrel végzett mérés eredményét a III.3-1. táblázat tartalmazza. A mért toron-aktivitáskonzentrációértékek  $2,73 \pm 0,43 \text{ kBq m}^{-3}$  –  $179,72 \pm 3,13 \text{ kBq m}^{-3}$  közöttiek, átlaguk  $45,05 \pm 0,31 \text{ kBq m}^{-3}$ . Az ezekből számolt emanációs tényezők  $0,34 \pm 0,03 \%$  –  $7,69 \pm 0,13 \%$  közötti értékek, átlaguk  $3,06 \pm 0,02 \%$ . Az aktivitáskonzentrációk alapján látható, hogy ezzel a forráskészítési eljárással széles spektrumon változtatható a toronkonzentráció. Az emanációs tényezők a hőkezelt kerámiákra jellemző értékeknek megfelelőek.

III.3-1. táblázat: Az akkumulációs módszerrel mért toronaktivitás-koncentrációk és az ezekből számolt emanációs tényezők

Minta azonosító (kerámiatípus/tórium-nitrát konc./égetési hőm.)	Toronkoncentráció (kBq m <sup>-3</sup> )	Emanációs tényező (%)
A/20/200	37,34 ± 1,43	5,02 ± 0,19
A/20/600	16,46 ± 0,95	2,19 ± 0,13
A/20/900	4,10 ± 0,47	0,55 ± 0,06
B/20/200	55,11 ± 1,74	7,02 ± 0,22
B/20/600	18,97 ± 1,02	2,52 ± 0,14
B/20/900	3,01 ± 0,41	0,40 ± 0,05
C/20/200	44,07 ± 1,55	6,93 ± 0,24
C/20/600	19,63 ± 1,04	2,91 ± 0,15
C/20/900	2,73 ± 0,43	0,42 ± 0,07
A/40/200	81,58 ± 2,11	5,12 ± 0,13
A/40/600	27,83 ± 1,23	1,84 ± 0,08
A/40/900	5,47 ± 0,55	0,42 ± 0,04
B/40/200	98,85 ± 2,32	6,05 ± 0,14
B/40/600	24,55 ± 1,16	1,94 ± 0,09
B/40/900	5,41 ± 0,54	0,40 ± 0,04
C/40/200	103,44 ± 2,38	7,69 ± 0,18
C/40/600	20,78 ± 1,07	1,66 ± 0,09
C/40/900	7,49 ± 0,64	0,51 ± 0,04
A/60/200	134,66 ± 2,71	6,22 ± 0,13
A/60/600	39,09 ± 1,89	1,78 ± 0,09
A/60/900	9,90 ± 0,74	0,45 ± 0,03
B/60/200	179,72 ± 3,13	7,44 ± 0,13
B/60/600	62,00 ± 1,84	2,75 ± 0,08
B/60/900	10,17 ± 0,75	0,47 ± 0,03
C/60/200	152,00 ± 2,88	7,47 ± 0,14
C/60/600	45,05 ± 1,57	2,20 ± 0,08
C/60/900	7,00 ± 0,62	0,34 ± 0,03

### Tórium-nitrát koncentráció hatása

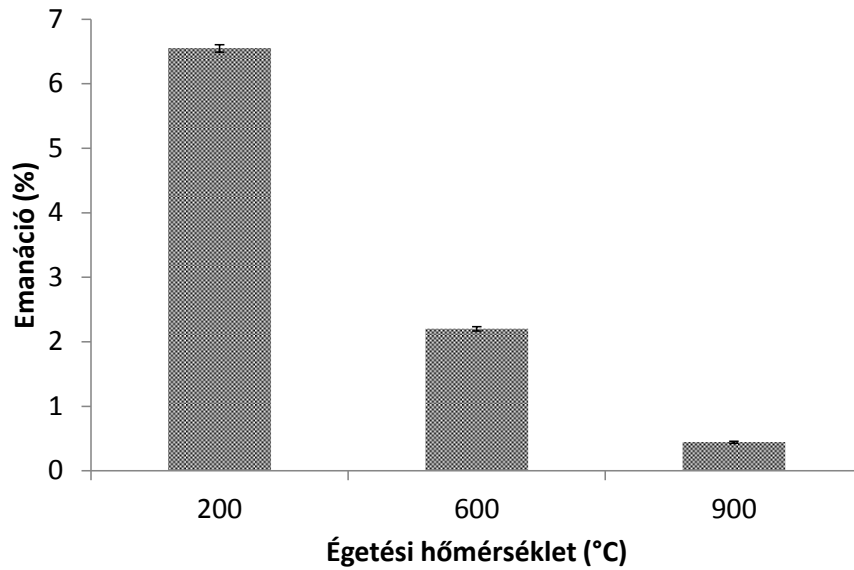
A III.3-2. ábrán látható, hogy a kerámiába kevert tórium-nitrát mennyisége és a mért emanációs tényező között nem található egyértelmű összefüggés (a tórium-nitrát koncentrációkra átlagolt emanációs tényezők 2,8 – 3,8 % között vannak, a köztük lévő eltérés nem jelentős), így a továbbiakban ezt nem vettem figyelembe az eredmények értékelésénél.



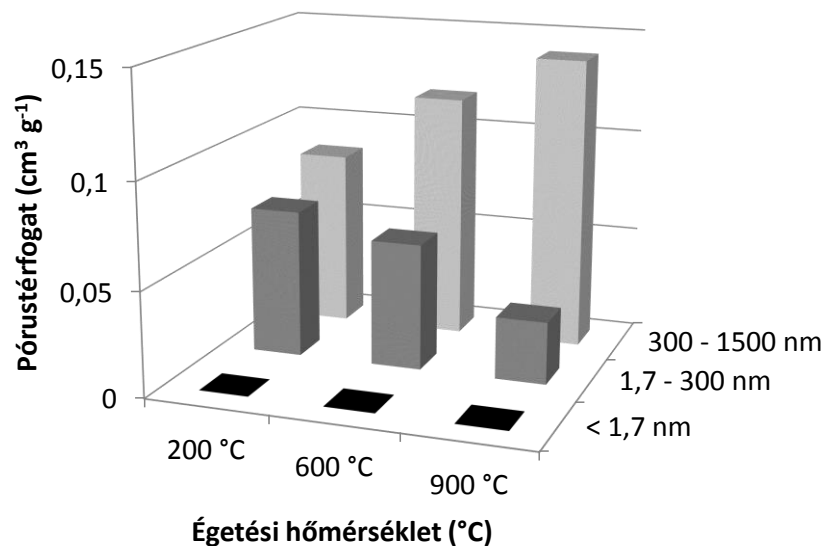
III.3-2. ábra: Átlagos emanációs tényezők különböző tórium-nitrát koncentráció esetén

### Égetési hőmérséklet hatása

Az égetési hőmérséklet hatását az emanációs tényező értékére a III.3-3. ábra szemlélteti. Látható, hogy az égetési hőmérséklet növelésével csökken az emanációs tényező. Ez annak köszönhető, hogy az égetés során a pórusok záródnak [32]. Minél magasabb égetési hőmérsékletet alkalmazunk, ez a hatás annál jelentősebb. A III.3-4. ábrán látszik az égetési hőmérséklet hatása a pórustérfogatra. A pórusméret-eloszlást három mérettartományba tartozó pórusra adták meg, ezek: 1,7 nm alatti pórusok (mikropórusok), 1,7 – 300 nm közötti pórusok (mezopórusok) és 300 – 1500 nm közötti pórusok (makropórusok). Látható, hogy míg a makropórusok térfogata nő, a mezopórusok összeolvadnak, térfogatuk csökken. Mivel a Rn-220 atommag néhány nm-es távolságot tud a szemcsében megtenni, így a mezopórusok térfogatának csökkenése jelentős hatással van a pórustérbe kijutni képes Rn-220 atomok mennyiségére, tehát az emanációs tényezőre. A mikropórusok térfogata az összes minta esetében gyakorlatilag elhanyagolható ( $< 0,0006 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ ). Az anyagszerkezeti vizsgálatok eredményei a függelék F.1. fejezetében találhatóak.



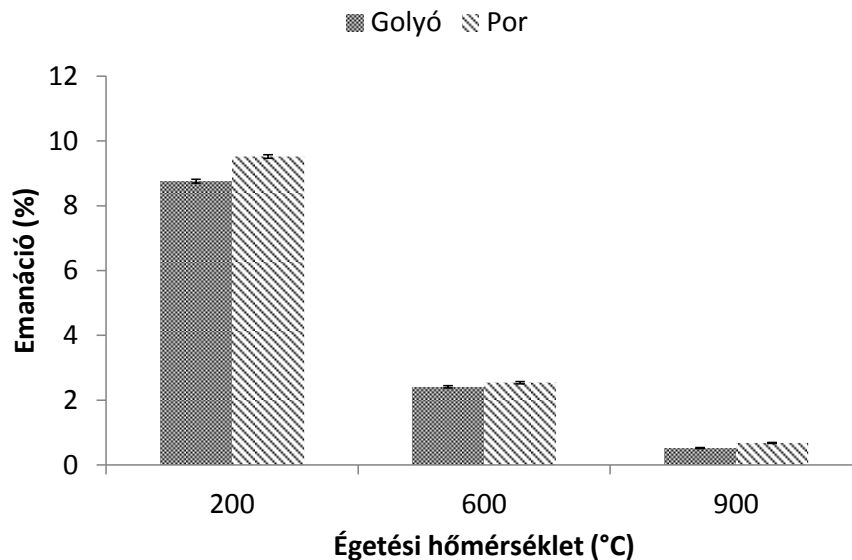
III.3-3. ábra: Átlagos emanációs tényezők különböző égetési hőmérséklet esetén



III.3-4. ábra: Pórustérfogat változása az égetési hőmérséklettel

Ezek után az előzetesen kiégetett mintákat porcelán mozsárban leporítottam és 1 mm lyukméretű szitán átszitáltam annak vizsgálatára, hogy a szerkezet ilyen módosításával növelhető-e az emanációs tényező. Az eredményeket a III.3-5. ábra mutatja be. Látható, hogy a kerámiagolyók leporításával nem érhető el jelentős javulás az emanációs tényezőben. Ez azt jelenti, hogy a 2 mm átmérőjű golyók esetén teljesül a szabadexhaláció feltétele, azaz az összes emanálódott toron kijut a mintából. Porított minták helyett a golyó formájú minták alkalmazása azért előnyösebb, mert ezekből

könnyebben kezelhető, szellőztethető forrás alakítható ki. Fontos azonban, hogy ne növeljük túlságosan a golyók méretét, hiszen bizonyos mintavastagság felett nem teljesülne a szabadexhaláció feltétele, tehát a javasolt átmérő kb. 2 mm. A 200 °C-nál alacsonyabb hőmérsékleten hőkezelt (szárított) minták használata problémás lenne, mivel így könnyen porlódó állagot kapnánk, és a kerámiagolyók szétesnének, így a 200 °C-nál alacsonyabb hőmérsékletű hőkezelés nem javasolt.



III.3-5. ábra: Porítás hatása az emanációs tényezőre különböző hőmérsékleteken kezelt minták esetén

### Kerámiatípus hatása

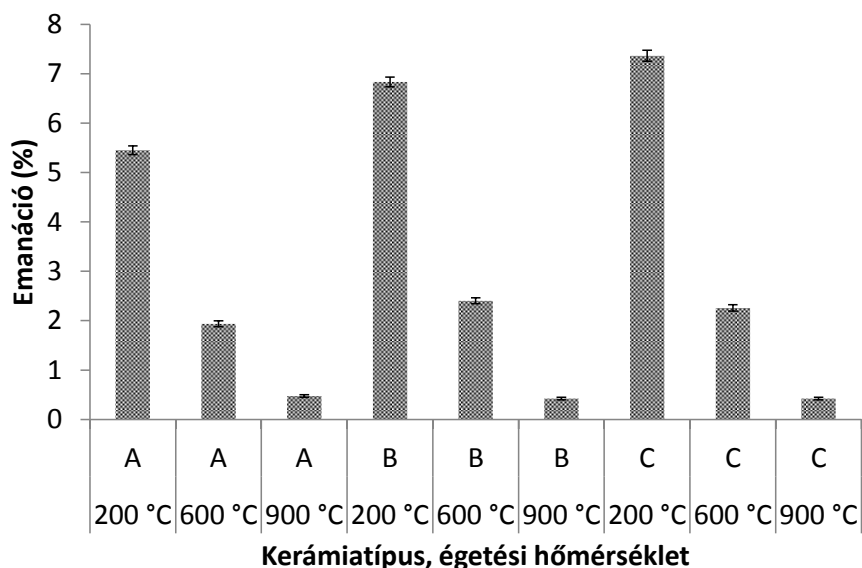
A röntgendiffrakciós vizsgálat eredményéből (III.3-2. táblázat) látszik, hogy eltérés tapasztalható az alkalmazott kerámiafajták összetételében. Az A típusú kerámia kvarc- és földpáttartalma magasabb, kalcittartalma alacsonyabb a többihez képest. A B típusú kerámiában az illit/muszkovit részaránya nagyobb, míg a kaolinit mennyisége kisebb. A hematit mennyisége mindhárom kerámia esetében elhanyagolható.

A III.3-6. ábrán az látszik, hogy a 200 °C-on hőkezelt kerámiák emanációs tényezője A-B-C irányban növekszik, míg a 600 °C-on és 900 °C-on kiégetett minták esetében nem tapasztalható jelentős eltérés az emanációban. 200 °C még nem játszódnak le a kerámiában kristályszerkezeti változások, ezen a hőmérsékleten még főként a kerámia víztartalmának távozása dominál [120]. A 600 °C-on hőkezelt mintáknál már a réteges

ásványok (kaolinit, illit) szerkezeti vize is távozik, valamint megtörténik a kvarc transzformációja (573 °C-on  $\alpha$ -kvarcból  $\beta$ -kvarc keletkezik), míg 900 °C-on további szerkezeti változások (pl. a kalcit dekarbonizációja) is lejátszódhatnak, valamint az alacsonyabb olvadáspontú alkotóelemek (pl. a földpátok) részleges olvadása is bekövetkezhet, így a pórusok záródnak [151, 152].

III.3-2. táblázat: Az alkalmazott kerámiatípusok összetétele

Mennyiség (%(m/m))	Kerámiatípus		
	A	B	C
Kvarc	43	36	38
Kaolinit	23	16	26
Kalcit	6	27	30
K-földpát	19	6	2
Na-földpát	7	0	1
Illit/muszkovit	2	14	3
Hematit	0	1	0



III.3-6. ábra: Átlagos emanációs tényezők különböző kerámiatípusok és égetési hőmérséklet esetén

Az eredmények alapján elmondható, hogy minden esetben az égetési hőmérséklet növelésével jelentősen csökken az emanáció, ezért az alacsonyabb, 200 °C

hőmérsékleten történő hőkezelés előnyös. Ezen a hőmérsékleten a kerámiák ásványi összetétele nincs számottevő hatással az emanációra, mivel az összetevők megolvadása miatti szerkezeti átalakulás nem következik be. Ennek ellenére – a kerámiatípusok eltérő szerkezeti tulajdonságai miatt – a jelenleg vizsgált három kerámiatípus esetében eltérés tapasztalható a 200 °C-on hőkezelt minták emanációs tényezőjében (A:  $5,45 \pm 0,15$  %, B:  $6,38 \pm 0,16$  %, C:  $7,36 \pm 0,19$  %). Tehát az itt bemutatott esetek közül a C jelzésű kerámiamátrix és a 200 °C-os hőkezelés alkalmazása javasolható toronforrás készítésére. A forrás aktivitása a kerámiához kevert tórium-nitrát koncentrációjával szabályozható, ez a toronemanáló-képességre nincs hatással.

### **III.3.2. Gázharisnya-alapú toronforrások**

Kísérleteim során háromféle, Magyarországon forgalmazott gázharisnyát vizsgáltam meg gamma-spektrometriás módszerrel. A kapott spektrumok alapján megállapítottam, hogy a gázharisnyákban nem volt szignifikánsan kimutatható tóriumaktivitás. Ezután egy Japánból származó gázharisnyát vizsgáltam meg, melyet a NIRS kalibráló kamrájánál használnak. Ebben az esetben a magyar gázharisnyához képest lényegesen nagyobb csúcsokat kaptam.

A kapott spektrumok a függelékben találhatóak (F.2-2-5 ábrák), a számolt aktivitásokat pedig a III.3-3. táblázat tartalmazza. Látható, hogy a magyar gázharisnya esetén a spektrumban két jelentősebb csúcs volt jelen (Th-234 és K-40), azonban ezek aktivitása elhanyagolható. Ezzel szemben a japán gázharisnyánál jelentős intenzitású Th-234 és Pb-212 csúcs alakult ki, melyek aktivitása a magyar harisnyában mértekhez képest nagyságrendekkel nagyobb. Következésképp elmondható, hogy a vizsgált három Magyarországon forgalmazott gázharisnyából nem alakítható ki toronforrás.

III.3-3. táblázat: A különböző gázharisnyák gamma-spektrometriás vizsgálata során azonosított izotópok és azok aktivitása

Izotóp	Energia (keV)	Aktivitás (Bq)			
		Japán	Magyar 1	Magyar 2	Magyar 3
Pb-210	46,52	612,8 ± 32,4	3,2 ± 0,4	0,4 ± 0,2	4,1 ± 0,5
Th-234	63,29	2131,6 ± 11,3	5,8 ± 0,1	3,8 ± 0,1	9,9 ± 0,1
Pb-212	238,63	1239,2 ± 9,1	0,7 ± 0,1	–	3,1 ± 0,1
Pb-214	351,92	291,9 ± 7,3	–	–	–
Tl-208	583,2	177,2 ± 3,7	–	–	–
	911,07	219,4 ± 11,6	–	–	–
Ac-228	969,11	120,9 ± 13,1	–	–	–
	Összesen	340,3 ± 17,5	–	–	–
K-40	1460,75	–	21,6 ± 1,1	28,8 ± 1,2	28,5 ± 1,2

### III.3.3. Radonmentes toronforrás készítésére irányuló kísérletek

A természetes összetételű tórium-nitrátot alkalmazó források jelentős problémája, hogy a vegyszer – a Th-232 mellett – az U-238 bomlási sorában található Th-230 izotópot is tartalmazza, melyből – Ra-226-on keresztül – Rn-222 keletkezik, amely számunkra „szennyezőanyag”, mivel jelentős háttérnövekedést eredményez, és így a toronmérések során zavaró tényezőként hat [78, 131]. Ez a probléma úgy küszöbölhető ki, ha valamilyen kémiai szeparációs technikával elkülönítjük a Th-232 bomlási sorának valamely elemét, és ebből izotópgenerátort alakítunk ki. Ezzel a technikával (elméletileg) radonmentes toronforrás készíthető.

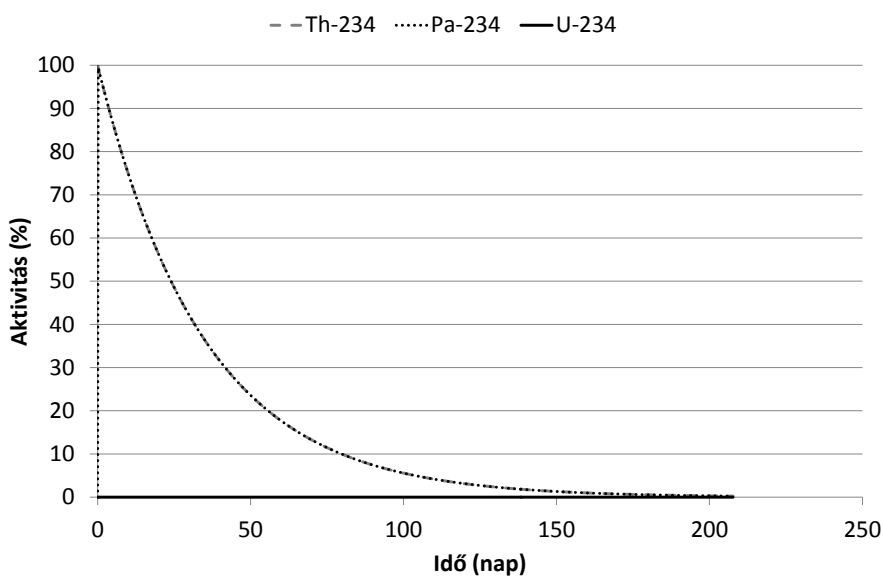
A II.6.1. fejezetben már említettem azokat a lehetőségeket, melyek a bomlási sorok egyensúlyi viszonyai alapján elvileg alkalmasak lehetnek a radonmentes toronforrás készítésére. Megállapítottam, hogy két kémiai elem, az aktínium és a tórium elválasztása jöhet szóba. A kísérleti megvalósítás előtt modellszámításokat végeztem az egyes izotópok elválasztása esetén várható aktivitásviszonyok feltérképezésére.



### III.3.3.1. Tórium- és aktíniumelválasztás esetén várható aktivitásviszonyok

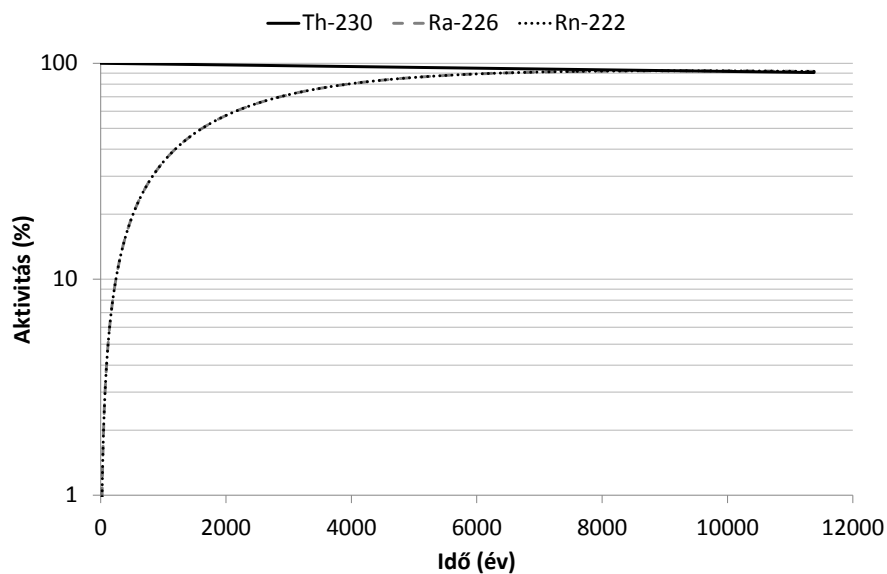
#### Tóriumelválasztás

Elsőként a tóriumelválasztást vizsgáltam meg. A II.6-1. táblázatban látható, hogy mind az U-238, mind a Th-232 bomlási sor 2-2 tórium izotópot tartalmaz (Th-234 és Th-230, illetve Th-232 és Th-228), azonban tóriumelválasztás esetén a Th-234 izotópot elhanyagolhatjuk, hiszen a 24 napos felezési idejének köszönhetően ez gyorsan Pa-234 izotóppá bomlik, ami szintén rövid felezési idővel tovább bomlik U-234 izotóppá. Tehát az egyensúlyi összetételű „öreg” tórium-nitrát a Th-234 és Pa-234 izotópokat nem tartalmazza, mivel azok aktivitása a gyártást követően kb. 150 nap alatt gyakorlatilag nullára csökken, az U-234 aktivitás pedig nem épül fel, köszönhetően a nem egyensúlyi helyzetnek (III.3-7. ábra).



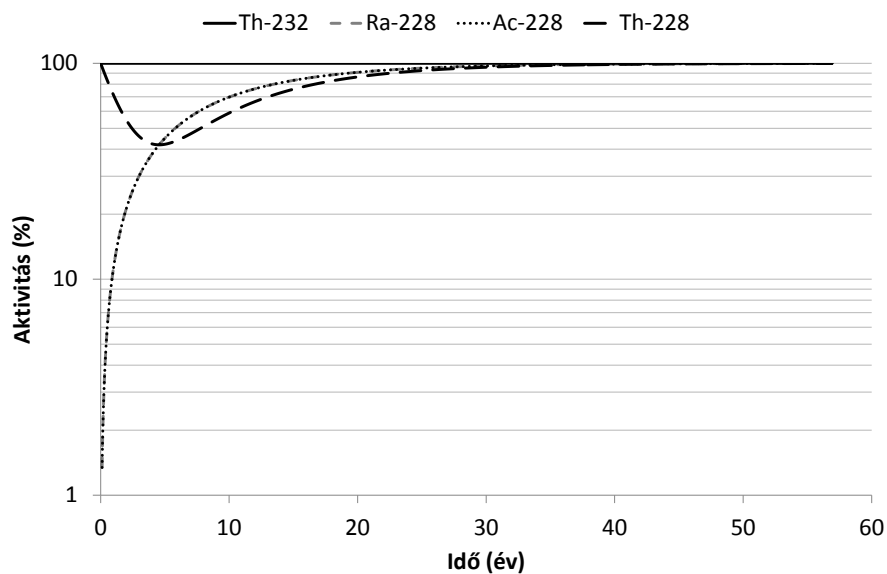
III.3-7. ábra: Th-234 anyaelem bomlása révén kialakuló aktivitásviszonyok

Az U-238 sorban jelenlévő másik tóriumizotóp, a Th-230 nagy felezési idejének (kb. 80 000 év) köszönhetően lassan bomlik Ra-226-má, mely szintén hosszú ideig garantálja a forrás alacsony Rn-222 tartalmát. A III.3-8. ábrán látható, hogy az egyensúly kb. 7000 év alatt áll be.



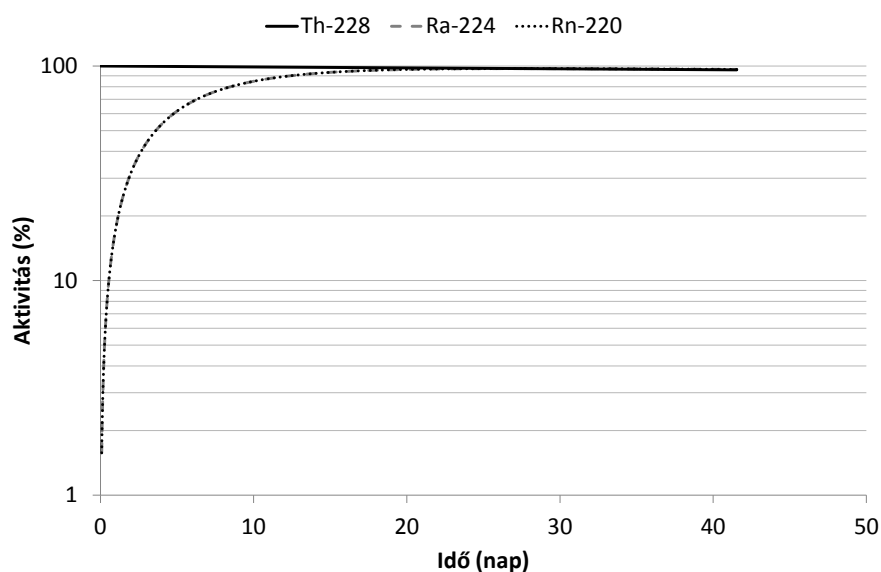
III.3-8. ábra: Th-230 anyaelem bomlása révén kialakuló aktivitásviszonyok (a függőleges tengelyen logaritmikus skálát alkalmazva)

Amennyiben a Th-232 bomlási sorában lévő egyensúlyi állapotot a tóriumizotópok eltávolításával megbontjuk, a Th-232 anyaelemet követő izotópok relatíve rövid felezési idejének (legfeljebb néhány év) köszönhetően viszonylag hamar visszaáll az egyensúlyi állapot (kb. 30 év). A III.3-9. ábrán látható, hogy a kezdeti Th-228 tartalom a bomlás következtében viszonylag gyorsan lecsökken (1,9 éves felezési idő), azonban a Th-232 bomlás következtében újra felépülő Ra-228, majd Ac-228 bomlása révén újra növekszik. A Th-228 aktivitása kb. 5 év elteltével éri el a minimumot, ami a kezdeti aktivitás kb. 40 %-a.



III.3-9. ábra: Th-232 anyaelem bomlása révén kialakuló aktivitásviszonyok (a függőleges tengelyen logaritmikus skálát alkalmazva)

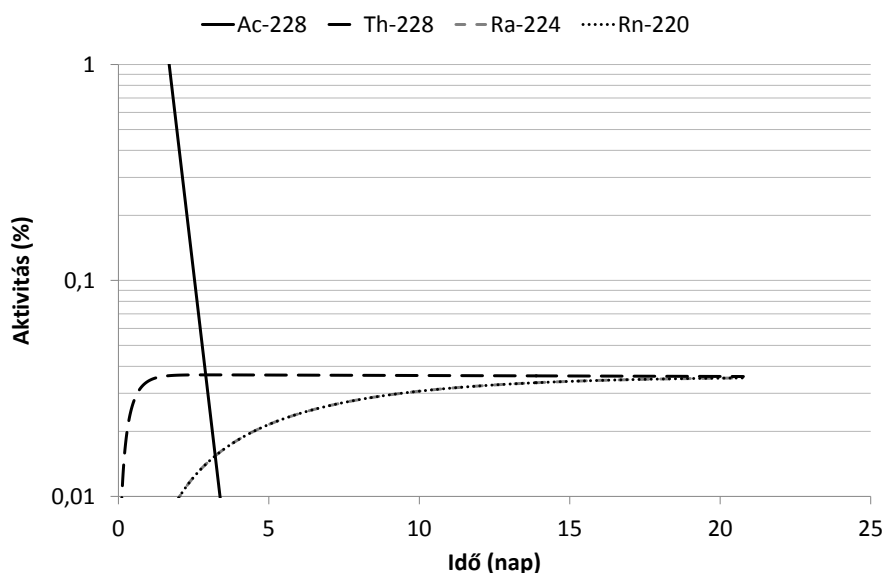
Ezek alapján megállapítható, hogy az így előállított forrás Th-228 tartalma hosszú ideig stabil, a kalibrációs mérések időskáláján állandónak tekinthető. A Th-228 aktivitásának időbeli változását természetesen figyelembe kell venni, azonban ez egyszerű korrekció segítségével könnyen megtehető. A III.3-10. ábra a Th-228 bomlása révén kialakuló Rn-220 aktivitást szemlélteti. Látható, hogy a Rn-220 aktivitása rövid időn belül, kb. 16 nap alatt felépül.



III.3-10. ábra: Th-228 anyaelem bomlása révén kialakuló aktivitásviszonyok (a függőleges tengelyen logaritmikus skálát alkalmazva)

## Aktíniumelválasztás

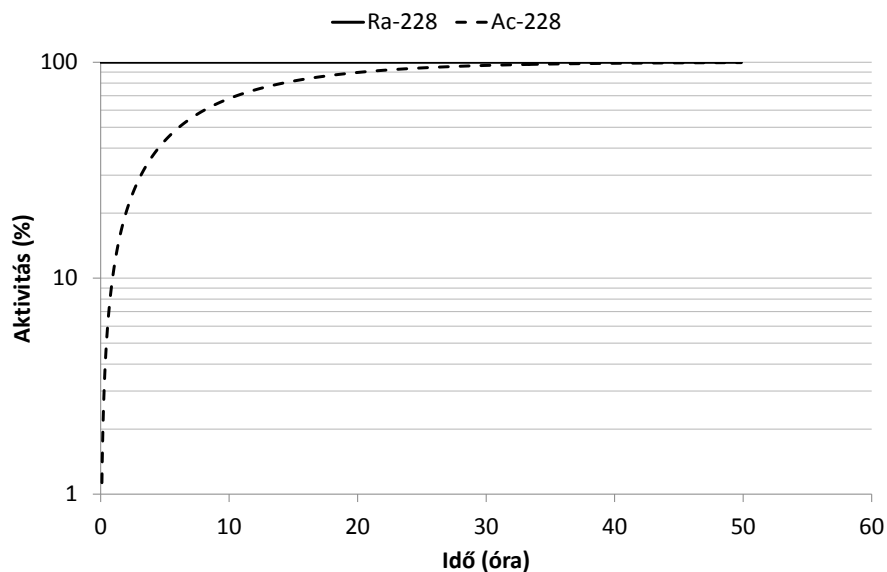
A másik lehetséges út toronforrás készítésére az Ac-228 izotóp elválasztása, azonban a II.6-1. táblázat alapján látható, hogy az Ac-228 és Th-228 leányeleme között szintén nem áll be egyensúlyi állapot. Ezt igazolja a modellszámítás is, melynek eredményét a III.3-11. ábrán mutatom be. Látható, hogy az Ac-228 aktivitás rövid felezési idejének (6,1 óra) köszönhetően meredeken esik, kb. 2 nap elteltével már kb. 0,1 % van csak jelen a mintában. Az ebből keletkező Th-228 aktivitás már kb. 1 nap alatt eléri a maximumát, azonban ez az érték kevesebb, mint 0,04 %. Az ebből keletkező Rn-220 kb. 16 nap elteltével éri el az egyensúlyi értéket.



III.3-11. ábra: Ac-228 anyaelem bomlása révén kialakuló aktivitásviszonyok (a függőleges tengelyen logaritmikus skálát alkalmazva)

A törzsoldatot izotópgenerátorként felhasználva látható, hogy az Ac-228 aktivitás az izotóp eltávolítása után viszonylag gyorsan újra felépül (III.3-12. ábra). 24 óra elteltével az egyensúly kb. 95 %-ra áll be, ami azt jelenti, hogy a generátoroldatból az Ac-228 naponta kinyerhető. Azonban, mivel minden fejési ciklusból kb. 0,04 % Th-228 aktivitás nyerhető ki, így is kb. 7 évre lenne szükség a kezdeti 100 % aktivitás felhalmozásához. A másik megoldás a felhasznált tórium-nitrát mennyiségének növelése. Ha célként tűzzük ki egy olyan forrás kialakítását, mellyel kb.  $3000 \text{ Bq m}^{-3}$  koncentrációt tudunk kialakítani a  $0,2 \text{ m}^3$  térfogatú kalibráló kamrában, 8 %-os

emanációs tényezőt feltételezve ehhez kb. 100 kg tórium-nitrátot kell felhasználni, amely jelentős mennyiség. Az izotópgenerátoros technikával kombinálva viszont a módszer eredményre vezethet. Például ha egy éven keresztül halmozzuk fel a Th-228 aktivitást, a kezdeti tórium-nitrát mennyiség 300 g-ra csökkenthető, amely már elfogadhatónak mondható. Emellett megjegyzendő, hogy ez az egyedüli olyan eljárás, amellyel elméletben garantáltan radonmentes toronforrás állítható elő, amely kizárólag a számunkra előnyös izotópokat (Th-232 bomlási sor elemei) tartalmazza, így mindenképpen javasolt a módszer gyakorlati tesztelése.



III.3-12. ábra: Ra-228 és Ac-228 közötti egyensúlyi viszonyok (a függőleges tengelyen logaritmikus skálát alkalmazva)

### III.3.3.2. A vizsgált szeparációs eljárások bemutatása

A modellszámítások eredményei alapján megállapítottam, hogy mind a tórium, mind az aktínium elválasztása elméletileg alkalmas lehet toronforrás készítésére. A szakirodalom alapos áttanulmányozása során számos olyan módszert találtam, amellyel a szelektív elválasztás megvalósítható. Ezek közül a következőket választottam ki kísérleti alkalmazásra:

1. Aktínium elválasztása DIPHONIX gyantával és HEDPA oldattal [121];
2. Rádium és aktínium megkötése DOWEX gyantával, aktínium lemosása [122]:

- A.  $\text{HClO}_4$  alkalmazása a második lépésben;
  - B.  $\text{HNO}_3$  alkalmazása a második lépésben;
  - C.  $\text{HNO}_3$  és  $\text{HCl}$  alkalmazása a második lépésben;
3. Aktínium elválasztása  $\text{FeCl}_3$ -os csapadékképzéssel [123];
  4. Tórium elektrodepozíciós leválasztása [149].

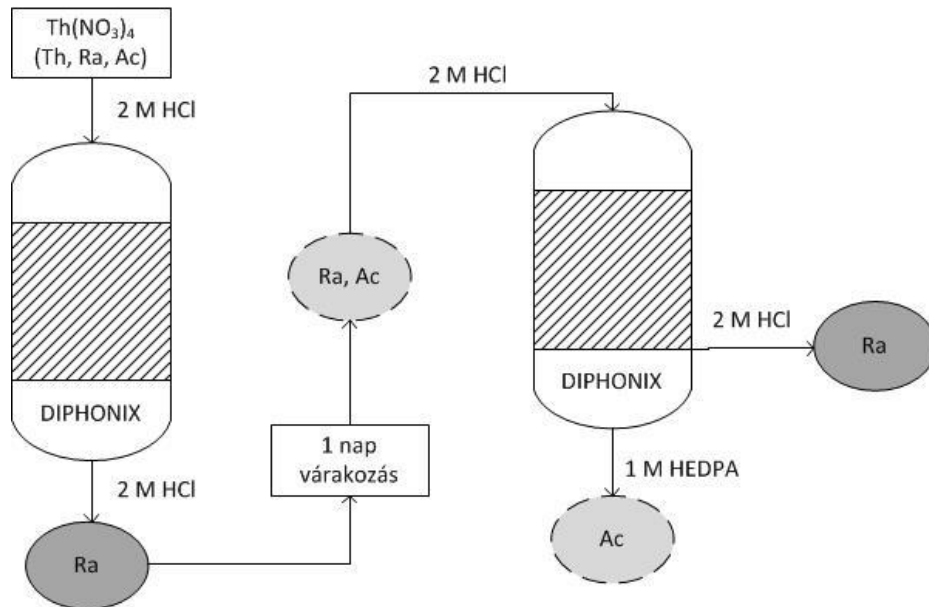
Minden esetben a rendelkezésemre álló, egyensúlyi összetételű, "öreg" tórium-nitrátból indultam ki. Az aktíniumelválasztásokhoz a szilárd vegyszerből kb. 0,05 M-os oldatot készítettem, melyhez 1 ml Ba-133 nyomjelzőt adtam (törzsoldat). Ez azért szükséges, mivel az összes tesztelt eljárás esetén első lépésben a rádium szeparációja valósul meg, majd egy ezt követő lépésben választjuk el egymástól a rádiumot és az aktíniumot. A folyamat nyomon követésére NaI(Tl) szcintillátoros gamma-spektrométert alkalmaztam. Mivel a bárium kémiai viselkedése a rádiuméhoz nagyon hasonló, a Ba-133 356 keV energiájú gamma-vonalának intenzitása a minta rádiumaktivitásával arányos. Annak megállapítására, hogy a minta tartalmaz-e rádiumot (báriumot) az egyes részfolyamatokat követően, NaI(Tl) szcintillátoros gamma-spektrométert alkalmaztam gyorsesztként. Ha az elválasztás sikeresnek bizonyult, HPGe detektoros gamma-spektrométerrel kiszámítottam az elválasztás hatásfokát.

Fontos megjegyezni, hogy ezen eljárások célja eredetileg nem az aktíniumkinyerés, hanem környezeti minták tisztítása, illetve alfa-spektrometriai mérésekhez történő kémiai előkészítése. Mivel ez esetben nem környezeti mintából indulunk ki, hanem tórium-nitrát oldatból, bizonyos tisztítási lépések kihagyhatók vagy egyszerűsíthetők lennének. A kísérletek során – a minél tökéletesebb elválasztás érdekében – az eljárásokat a szakirodalomban található módon hajtottam végre, egyszerűsítés nélkül.

### **Aktínium elválasztása DIPHONIX gyantával és HEDPA oldattal**

100 ml 2 M  $\text{HCl}$ -alapú törzsoldatot készítettem, melyből 10 ml-t 0,7 cm átmérőjű, 2,5 cm magasan 100-200 mesh szemcseméretű, 10 ml 2 M  $\text{HCl}$  oldattal prekondicionált DIPHONIX gyantával töltött ioncserélő oszlopra vittem. A rádiumot és a báriumot 15 ml 2 M  $\text{HCl}$  oldattal lemostam az oszlopról. Ez után 1 nap várakozás szükséges, hogy a Ra-228-ból Ac-228 képződjön. A várakozást követően az oldatot egy újabb ioncserélő oszlopra vittem, majd szintén 15 ml 2 M  $\text{HCl}$  oldattal eluáltam a rádiumot és a báriumot. Az oldat aktínium-tartalma az oszlopon maradt, amit 5 ml 1 M HEDPA (1-

hidroxietán-1,1-difoszfát) oldattal lemostam. Az eluált rádiumtartalmú oldatból további 1 nap várakozást követően az aktínium-elválasztás ismételt elvégezhető. Az eljárás vázolata a III.3-13. ábrán látható [121].



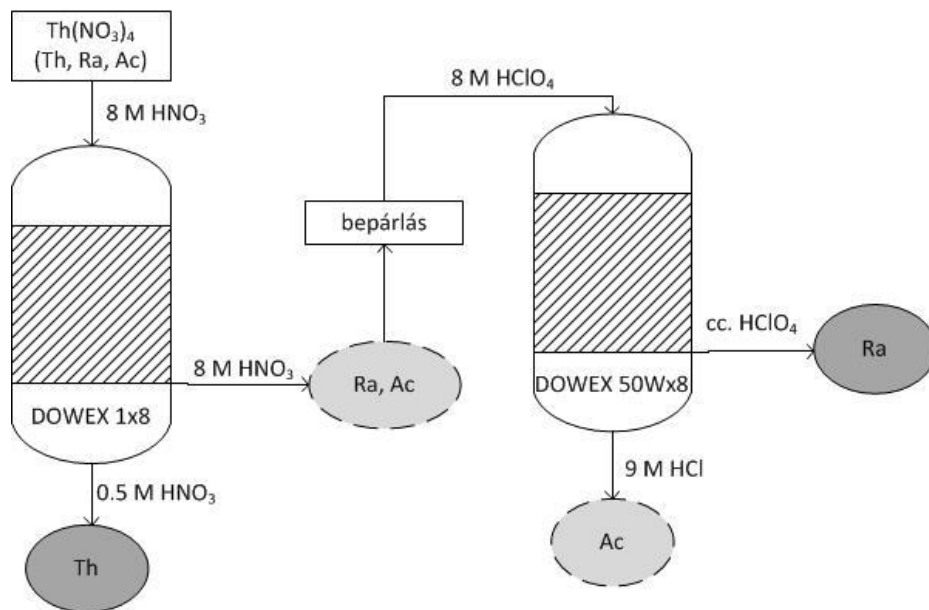
III.3-13. ábra: Aktínium kétlépcsős ioncserés elválasztása DIPHONIX gyantával és HEDPA oldattal

### Rádium és aktínium megkötése DOWEX gyantával, aktínium lemosása

Három eljárást teszteltem, melyek mindegyike kétlépcsős ioncserés elválasztás. Az első lépés egy anioncsere, melyhez 5 ml 8 M HNO<sub>3</sub>-alapú törzsoldatot 1 cm átmérőjű, 5 cm magasan 200-400 mesh szemcseméretű, 20 ml 8 M HNO<sub>3</sub> oldattal prekondicionált DOWEX 1x8 gyantával töltött ioncserélő oszlopra vittem. 20 ml 8 M HNO<sub>3</sub> oldattal lemostam az oszlopról a rádiumot (báriumot) és az aktíniumot, majd az eluátumot szárazra pároltam. Ezután következett a kationcsere, melyet 0,7 cm átmérőjű, 2,5 cm magasan 100-200 mesh szemcseméretű DOWEX 50Wx8 gyantával töltött ioncserélő oszlopon valósítottam meg. A rádium és az aktínium lemosására háromféle eljárást teszteltem [122]:

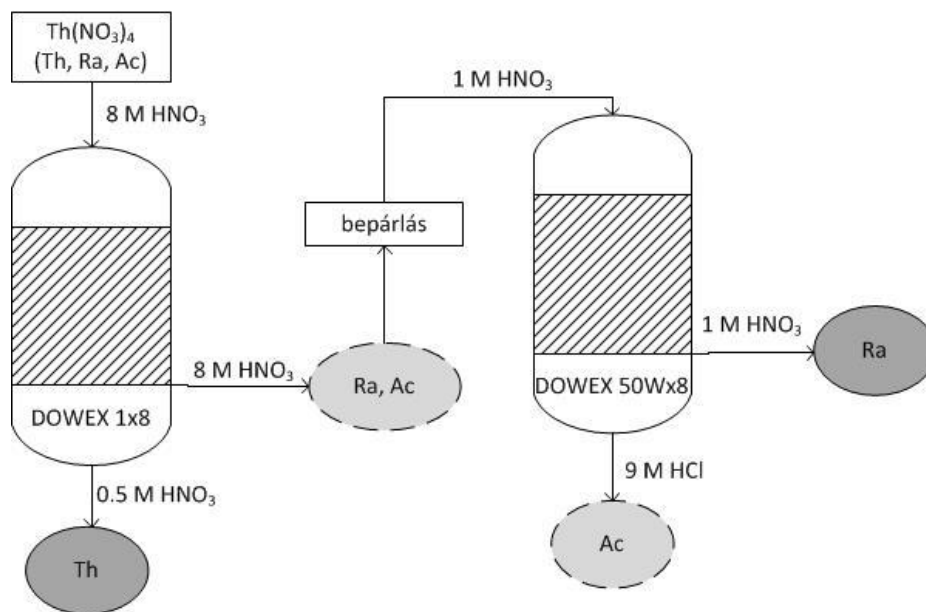
- A. A kationcserélő gyantát 15 ml 8 M HClO<sub>4</sub> oldattal prekondicionáltam. A bepárlás maradékát 5 ml 8 M HClO<sub>4</sub> oldattal felvettem, majd az oszlopra vittem. A rádiumot 15 ml cc. HClO<sub>4</sub>-val, az aktíniumot 15 ml 9 M HCl oldattal eluáltam (III.3-14. ábra).

- B. A kationcserélő gyantát 15 ml 1 M  $\text{HNO}_3$  oldattal prekondicionáltam. A bepárlás maradékát 5 ml 1 M  $\text{HNO}_3$  oldattal felvettem, majd az oszlopra vittem. A rádiumot 15 ml 1 M  $\text{HNO}_3$ , az aktíniumot 15 ml 9 M  $\text{HCl}$  oldattal eluáltam (III.3-15. ábra).
- C. A kationcserélő gyantát 15 ml 1 M  $\text{HNO}_3$  oldattal prekondicionáltam. A bepárlás maradékát 5 ml 1 M  $\text{HNO}_3$  oldattal felvettem, majd az oszlopra vittem. A rádiumot 15 ml 3 M  $\text{HCl}$ , az aktíniumot 15 ml 9 M  $\text{HCl}$  oldattal eluáltam (III.3-16. ábra).

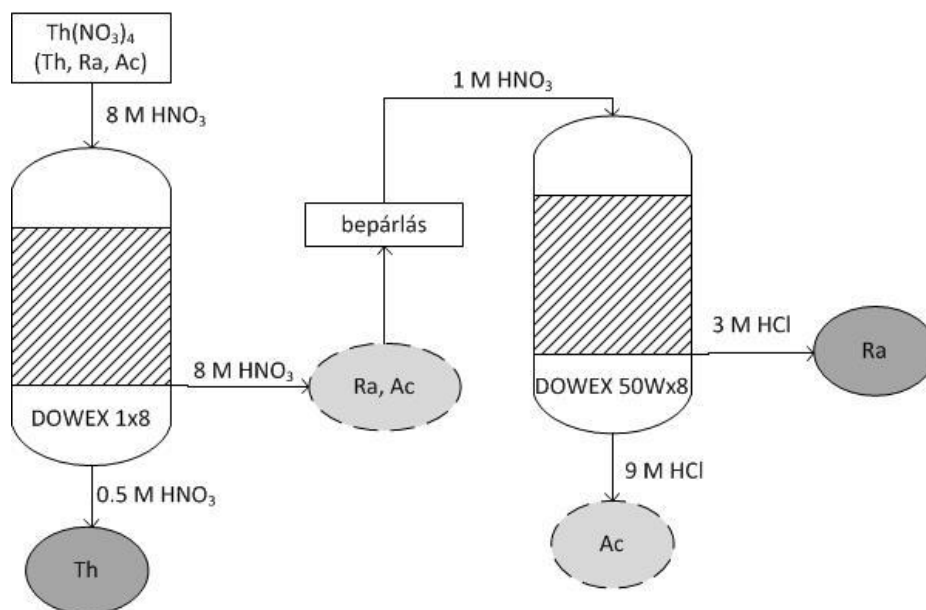


III.3-14. ábra: Aktínium kétlépcsős elválasztása DOWEX anion- és kationcserélő gyantával (A változat)





III.3-15. ábra: Aktínium kétlépcsős elválasztása DOWEX anion- és kationcserélő gyantával (B változat)

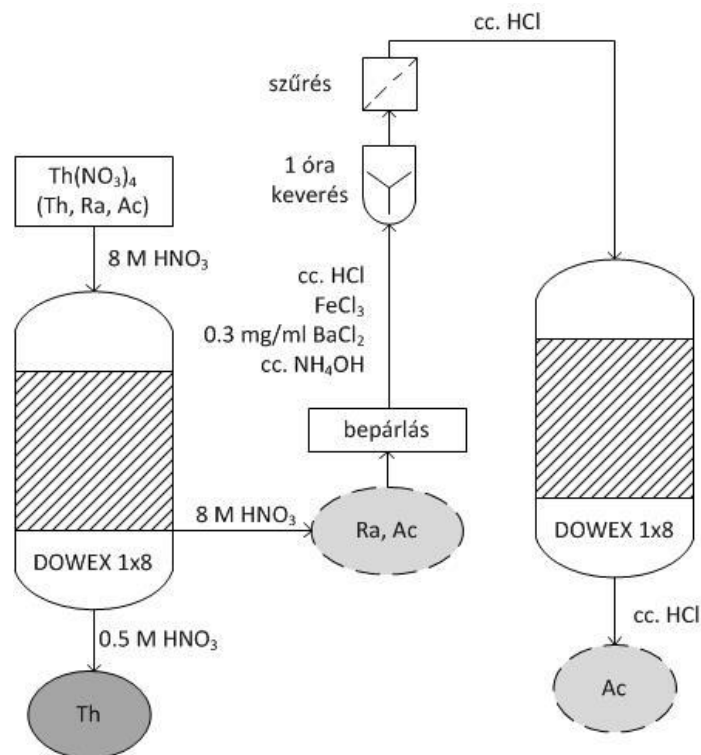


III.3-16. ábra: Aktínium kétlépcsős elválasztása DOWEX anion- és kationcserélő gyantával (C változat)

### Aktínium elválasztása $\text{FeCl}_3$ -os csapadékképzéssel

A  $\text{FeCl}_3$ -os csapadékképzést megelőzően a törzsoldat anioncserés tisztítását hajtottam végre DOWEX 1x8 gyantával töltött ioncserélő oszlopon, az előző pontban leírtak alapján [122]. A bepárlás maradékát 5 ml cc. HCl-val vettem fel, majd 1 mg

szilárd  $\text{FeCl}_3$ -ot, 0,25 ml 0,3 mg/ml koncentrációjú  $\text{BaCl}_2$  oldatot és 10 ml cc.  $\text{NH}_4\text{OH}$ -ot adtam hozzá. Az oldatot 1 óráig mágneses keverőn kevertettem, majd Millipore AA 0,8  $\mu\text{m}$  szűrőpapíron átszűrtem, desztillált vízzel néhányszor átmostam. A csapadékot 5 ml cc.  $\text{HCl}$ -ban feloldottam, majd DOWEX 1x8 anioncserélő gyantával töltött ioncserélő oszlopon tisztítottam. Az aktíniumot cc.  $\text{HCl}$ -val eluáltam [123]. Az eljárás vázolata a III.3-17. ábrán látható.



III.3-17. ábra: Aktínium elválasztása  $\text{FeCl}_3$ -os csapadékképzéssel

### Tórium elektrodepozíciós leválasztása

A Hallstadius által 1984-ben leírt eljárás szerint a tórium elektrodepozíciós leválasztása 90-100 %-os hatásfokkal lehetséges, míg a leválasztás hatásfoka rádiumra kevesebb, mint 1 % [149]. Ez számunkra azért előnyös, mert ha a törzsoldatban lévő tóriumizotópokat le tudjuk választani a rádiumizotópok leválasztása nélkül, olyan forrást alakíthatunk ki, melyben a Th-228 és a Ra-224 közti szekuláris egyensúly kb. 16 nap alatt beáll (95 %-ra), míg a Th-230 és a Ra-226 közti egyensúly beállításához szükséges idő több mint 7000 év, tehát a forrás radonmentesnek tekinthető.

Az elektrodepozíciós forrás készítéséhez 0,5 g szilárd tórium-nitrátot kevés desztillált vízben feloldottam, majd 1 ml 0,3 M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  oldatot adtam hozzá, és szárazra

pároltam. A bepárlási maradékhoz 300 µl cc. H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-at adtam, a csapadékot rázogatóssal, óvatos melegítéssel feloldottam. Az oldatot kb. 4 ml desztillált vízzel hígítottam, majd néhány csepp timolkék indikátoroldat hozzáadása után cc. NH<sub>4</sub>OH-dal lazacrózsaszínűre titráltam (pH ~ 2). Az oldatot elektrodepozíciós cellába töltöttem, a leválasztást magas nikkeltartalmú savállóacél-lemezre, 1,2 A áramerősséggel, 1 óráig végeztem. A folyamat vége előtt 1 perccel néhány csepp cc. NH<sub>4</sub>OH-ot adtam az oldathoz az elektrodepozíciós réteg fixálása céljából. A leválasztást követően a lemezt híg ammóniaoldattal (1 ml cc. NH<sub>4</sub>OH 100 ml vízben), majd acetonnal leöblítettem, a nedvességet felitattam, szárítottam [149].

### **III.3.3.3. A szeparációs eljárások eredményei**

#### **Ioncserés aktínium szeparációs eljárások eredményei**

Az aktínium elválasztás eredményeinek értékelését HPGe detektoros gamma-spektrometriával végeztem. A különböző módszerek tesztelése során, az egyes részfolyamatokat követően felvettem az oldatok gamma-spektrumát, és összevettem a törzsoldat előzetesen felvett gamma-spektrumával (függelék F.2-6-10. ábrái). Az elválasztás hatásfokát az Ac-228 338 keV, illetve a Ba-133 356 keV energiájú gamma-vonalai esetében, a mintaoldatban és a törzsoldatban mért intenzitások alapján végeztem. Mivel az energiák elegendően közel esnek egymáshoz, a detektor hatásfokát a két energián azonosnak tekintettem, és a számításnál nem vettem figyelembe. Az elválasztás hatásfoka ez alapján:

$$\eta_{elv} = 1 - \frac{I_{Ac-228}^T / I_{Ba-133}^T}{I_{Ac-228}^M / I_{Ba-133}^M} \quad (\text{III.3-2})$$

ahol  $I_{Ac-228}^M$  az Ac-228 338 keV-es gamma-vonalának intenzitása a mintaoldatban;  $I_{Ba-133}^M$  a Ba-133 356 keV-es gamma-vonalának intenzitása a mintaoldatban;  $I_{Ac-228}^T$  az Ac-228 338 keV-es gamma-vonalának intenzitása a törzsoldatban;  $I_{Ba-133}^T$  a Ba-133 356 keV-es gamma-vonalának intenzitása a törzsoldatban.

A DIPHONIX gyantával és HEDPA oldattal végzett aktínium elválasztás (1. módszer) során a mintaoldatban sem Ac-228, sem Ba-133 csúcs nem volt azonosítható,

tehát az elválasztás ezzel az eljárással nem volt eredményes, elválasztási hatások nem voltak számolhatóak.

A DOWEX gyantával végzett rádium és aktínium megkötés, majd aktínium lemosás (2. módszer) A változata esetén a kísérlet során nehézségek adódtak, mivel a cc. HClO<sub>4</sub> részlegesen elrontotta az ioncserélő oszlopot, így az elválasztás fizikai okok miatt meghiúsult. A B és C változatnál a végső oldatban mind az Ac-228, mind a Ba-133 gamma-vonalai azonosíthatók voltak, viszont az intenzitásértékek aránya a törzsoldatban mérthez képest gyakorlatilag nem változott, ezért ezekben az esetekben az elválasztás hatásfoka nulla.

A FeCl<sub>3</sub>-os csapadékképzéssel végzett aktínium elválasztás (3. módszer) esetén a mintaoldat gamma-spektrometriás meghatározását elvégeztem közvetlenül a csapadékképzés és szűrés után, valamint a 2. ioncserés lépést követően. Mindkét esetben azonosíthatók az Ac-228 és Ba-133 csúcsok, valamint az intenzitásértékek alapján az aktínium részarányának növekedése figyelhető meg. Az elválasztási hatások a 2. ioncserés lépést követően 53 %, az ioncsere előtt pedig 74 %, tehát megállapítható, hogy az 2. ioncserés lépés aktíniumvesztést eredményez, tehát a további kísérletek során elhagyható.

Az ioncserés elválasztáson alapuló eljárások eredményeit a III.3-3. táblázat összesíti.

III.3-3. táblázat: Az ioncserés szeparációs eljárások eredményei

	Intenzitás (10 <sup>-3</sup> cps)		I <sub>Ac-228</sub> /I <sub>Ba-133</sub>	Hatásfok (%)
	Ac-228	Ba-133		
Törzsoldat	4516 ± 130	5688 ± 148	0,79 ± 0,03	–
1. módszer	–	–	–	–
2. módszer A. változat	–	–	–	–
2. módszer B. változat	118 ± 14	153 ± 16	0,77 ± 0,12	0
2. módszer C. változat	279 ± 24	354 ± 27	0,79 ± 0,09	0
3. módszer	109 ± 15	65 ± 11	1,68 ± 0,37	53 ± 10
3. módszer ioncsere nélkül	203 ± 24	67 ± 17	3,03 ± 0,85	74 ± 7

## **Tórium elektrodepozíciós leválasztásának eredménye**

Az elektrodepozíciós forrás spektrumát PIPS detektoros alfa-spektrométerrel vettem fel (függelék F.2-11. ábrája). Látható, hogy a spektrumban csak a Th-232 bomlási sor elemeit, valamint egy kis Th-230 csúcsot sikerült azonosítani, tehát az elválasztás sikeres volt. A spektrum alapján meghatároztam a minta Th-228 aktivitását, ami kb. 0,2 Bq. Figyelembe véve a kiindulási tórium-nitrát mennyiségét (0,5 g) megállapítható, hogy a leválasztás hozama kb. 0,2 %. Ezt követően akkumulációs módszerrel meghatároztam az elektrodepozíciós forrás emanációs tényezőjét, azonban az alacsony Ra-224 aktivitás miatt a minta toronkoncentrációja nem volt mérhető.

Mivel jelen esetben az egyensúlyi viszonyok, valamint maga az elektrodepozíciós módszer, nem teszik lehetővé izotópgenerátor kialakítását, ezért ezzel a módszerrel csak jelentős vegyszerfelhasználással lehetne kellően nagy aktivitású forrást kialakítani, valamint a szabadexhalációs kialakítás miatt a jelenlegi kalibráló kamra teljes átalakítása válna szükségessé. Ezen felül az így kialakított forrás továbbra is tartalmazza a számunkra hátrányos Th-230 izotópot, amelyből idővel Rn-222 keletkezik, tehát a módszer csak korlátozottan oldja meg a radonmentesítés problémáját. A fenti megfontolásokból a – további optimalizálást követő – gyakorlati megvalósításra a FeCl<sub>3</sub>-os csapadékképzésen alapuló aktínium elválasztás javasolható.

### **III.3.4. A forrásfejlesztésre irányuló kísérletek értékelése**

A kísérletek során a kerámia- és a gázharisnya-alapú forrásokat vizsgáltam, valamint aktínium és tórium elválasztási módszereket teszteltem. A tórium-oxid tartalmú gázharisnya alkalmazásának nagy előnye, hogy kereskedelmi forgalomban kapható, így egyszerűen hozzáférhető, nem szükséges bonyolult laboratóriumi eljárásokat alkalmazni. További előnye, hogy a toronkoncentráció rugalmasan változtatható mind az alkalmazott harisnyamennyiség, mind a páratartalom változtatásával, azonban ezáltal a kialakított toron atmoszféra jelentősen függ a páratartalomtól, így a stabil működéshez annak szigorú kontrollálása szükséges. További problémát jelent, hogy a vizsgált Magyarországon forgalmazott gázharisnyák radioaktivitása nem elegendő toronforrás kialakításához.

A másik megoldás tóriumtartalmú oldat kerámiához keverése, ennek golyókká formálása és hőkezelése. Először természetes összetételű tórium-nitráttal végeztem kísérleteket. A kísérleti eredmények alapján a 200 °C-on történő hőkezelést javaslom. Ennek a forrástípusnak az előnye, hogy viszonylag egyszerűen előállítható, valamint hogy a szükséges eszközök, vegyszerek rendelkezésre állnak. Hátránya, hogy a természetes összetételből eredően a forrás Rn-222 izotópot is tartalmaz, valamint hogy a forrás kialakítása miatt a toronkoncentráció nem szabályozható a páratartalom változtatásával, azonban ez egyben azt is jelenti, hogy a forrás nem érzékeny a páratartalom változására.

Ezt követően különböző kémiai szeparációs eljárásokat teszteltem radonmentes toronforrás készítése céljából, melyek közül a  $\text{FeCl}_3$ -os csapadékképzésen alapuló aktíniumelválasztás bizonyult a leghatékonyabbnak. Az így elválasztott Ac-228 tartalmú oldatból ezután generátor gyártható, melyből a Ra-224 naponta kinyerhető. Az eljárás előnye, hogy tiszta (radonmentes) toronforrás állítható elő. Hátránya, hogy bonyolult előkészítési folyamatot igényel, valamint hogy az elválasztott Ac-228 izotópból kb. 0,04 % Th-228 aktivitás keletkezik, ami további problémákat vet fel (ld. III.3.3.1. fejezet), és a későbbiekben – a tényleges forráskészítés során – optimalizálást kell végezni ezek megoldására.

Mindezeket összegezve a legalkalmasabbnak a  $\text{FeCl}_3$ -os aktíniumelválasztást követő kerámiaforrás készítést találom. Amennyiben a kalibrációt több koncentrációsinten is el kívánjuk végezni, ez többféle, különböző aktivitású forrás készítését jelenti, mivel ez esetben a toronkoncentráció szabályozása a forrás tóriumtartalmával lehetséges. Az javasolt forráskészítési eljárás lépéseit a későbbiekben elvégzett optimalizálást követően lehet pontosan megadni.

## **III.4. Kalibráció**

### **III.4.1. Kalibrációs módszer**

A fent leírt fejlesztési, optimalizálási kísérletek utáni fontos lépés magának a kalibrációs protokollnak a megadása. Szakirodalmi adatok [2, 3, 115, 127], korábbi kísérletek eredményei, valamint az itt leírt eredmények ismeretében megadok egy toronmonitorok kalibrálására alkalmas módszert.

10 db CR-39 alapú radon/toron monitort a  $0,2 \text{ m}^3$  térfogatú kalibráló kamra 30 – 50 cm-es térrészébe helyezünk (a kamra paramétereinek leírása a III.1.6. fejezetben található). A kamra ventilátorát üzembe helyezzük, majd megfelelően zárjuk a fedelet.

A labor hőmérsékletét szabályozó klímaberendezés hőmérsékletét úgy állítjuk be, hogy a kamrában mért hőmérséklet  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  legyen.

A külső levegőpumpát üzembe helyezzük, az alkalmazott térfogatáram  $4 \text{ l/perc}$ . Az áramoltatott levegő a páratartalom-szabályozó rendszeren halad keresztül, majd a toronforráshoz csatlakozik. A páratartalom-szabályozó rendszer száraz és nedves ágának szelepeit úgy állítjuk be, hogy a keverőkamrában mért páratartalom legfeljebb  $30 \%$  legyen. A forrásból kilépő levegőt a kamra szelepén keresztül vezetjük be.

A kamrában kialakuló toronkoncentráció monitorozása a Sarad EQF 3220 berendezéssel történik. A műszert radon/toronmérő üzemmódban működtetjük  $1$  órás ciklusidővel. A folyamatos mintavétel a kamra szelepén keresztül,  $30\text{-}50 \text{ cm}$  mélységből, ismert hosszúságú műanyagcsövön keresztül történik a műszer beépített pumpája segítségével, melynek térfogatáramát pontosan meg kell határozni. (A toron bomlása miatti korrekció a térfogatáram és a csőhossz ismeretében meghatározható.) A műszerből kilépő toronos levegőt a szabadba kibocsátjuk.

A kamrában a folyamatos toronos levegőbetáplálás következtében fellépő túlnyomás elkerülése érdekében a kamrából műanyagcsövet vezetünk a szabadba, melyen keresztül a felesleges levegő távozni tud. (A cső hosszát úgy választjuk meg, hogy a toron jelentős része a kibocsátás előtt elbomoljon.)

Referencia eljárásként Lucas-cellás mintavételt és Pylon AB-5 műszerrel történő mérést alkalmazunk. A toronkoncentráció meghatározása TCM módszerrel történik a III.2.3. fejezetben leírt protokoll alapján. Mintavételt naponta három alkalommal végzünk, kétóránként.

A kalibrációt több koncentrációsinten ajánlott elvégezni, melyet beállításához különböző kerámiaforrásokra van szükség. (A Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében rendelkezésre álló kerámiaforrások alkalmazásával a kamrában  $3, 6$  és  $20 \text{ kBq m}^{-3}$  toronkoncentrációt tudunk létrehozni.) A kalibrációs mérés időtartamát az alkalmazandó források aktivitásának ismeretében kell meghatározni úgy, hogy a kiértékeléshez elegendő nyomszámot érjünk el. (A jelenleg használt  $20 \text{ kBq m}^{-3}$ -es forrás esetében az expozíciós idő kb.  $100$  óra.)

A mérést követően a nyomdetektorok kiértékelése az erre a célra kifejlesztett síkágys szkenner-alapú automatizált kiértékelő rendszerrel és az ahhoz tartozó kiértékelő szoftverrel történik [128]. A kiértékelő berendezés a III.4-1. ábrán látható.



III.4-1. ábra: Nyomdetektorok kiértékeléséhez használt automatizált kiértékelő rendszer

A radon és toron kalibrációs faktorokat a következőképpen határozzuk meg:

$$F_{Rn} = \frac{TD_L}{t \cdot C_{Rn}} \quad (\text{III.4-1})$$

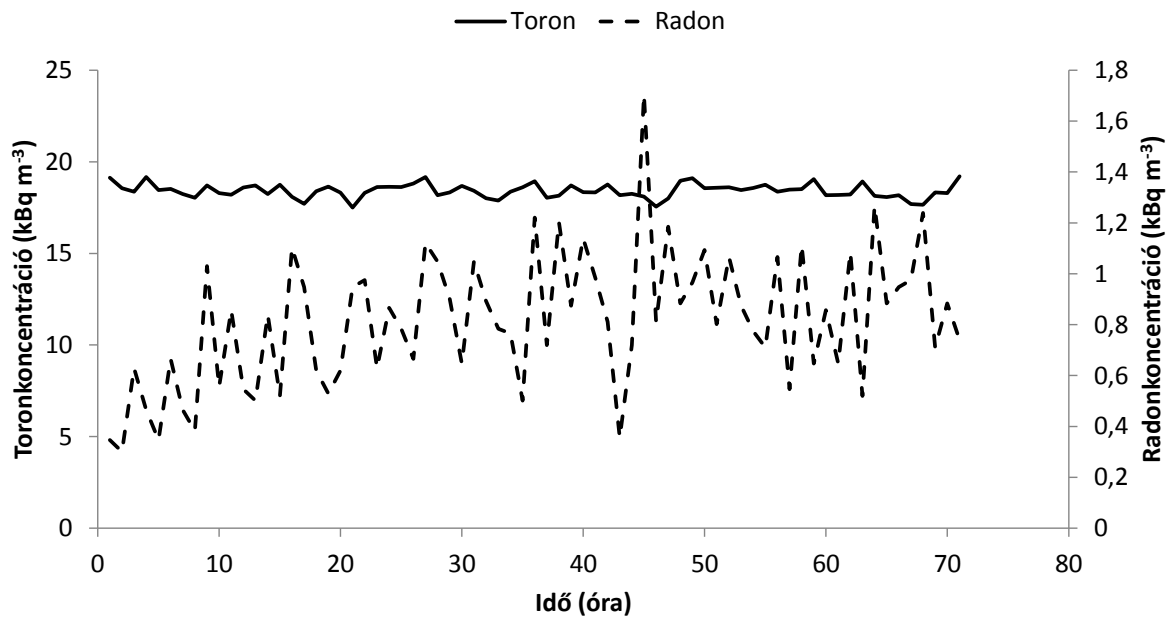
$$F_{Tn} = \frac{TD_H - TD_L}{t \cdot C_{Tn}} \quad (\text{III.4-2})$$

ahol  $F_{Rn}$  és  $F_{Tn}$  a kalibrációs faktor radonra ill. toronra (nyom  $\text{cm}^{-2} \text{h}^{-1} \text{Bq}^{-1} \text{m}^3$ );  $C_{Rn}$  és  $C_{Tn}$  a referencia műszerrel mért radon ill. toronaktivitás-koncentráció ( $\text{Bq m}^{-3}$ );  $t$  a kalibráció időtartama (h);  $TD_L$  és  $TD_H$  az alacsony ill. magas légserearányú diffúziós kamrában lévő lapkán kapott háttérrel korrigált nyomsűrűség (nyom  $\text{cm}^{-2}$ ) – a letapogatott felület ismeretében számolható.

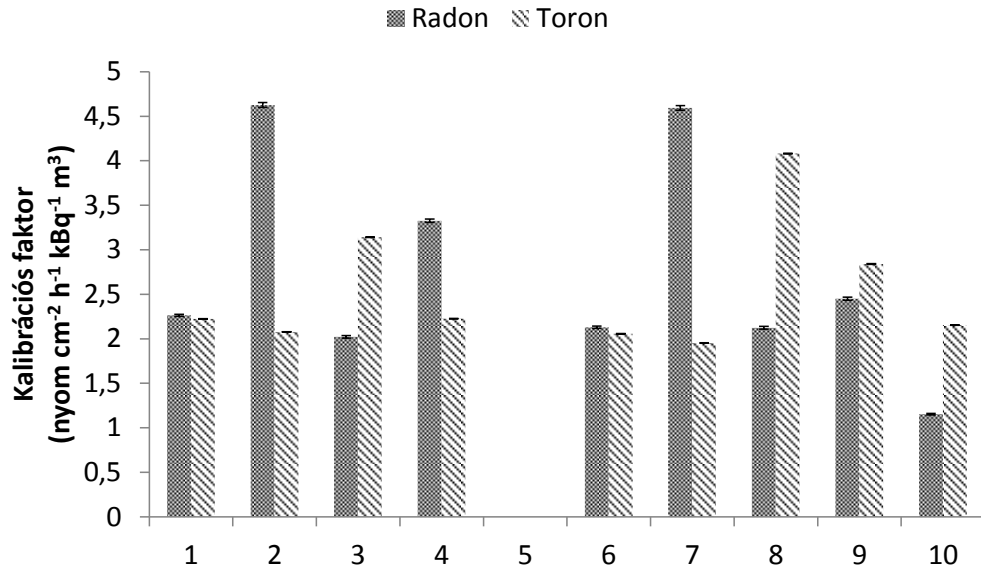


### III.4.2. Kalibrációs tesztmérések

A fenti protokollnak megfelelően 10 db Raduet típusú radon-toronmonitor kalibrálását végeztem el. A Sarad EQF 3220 monitor mért radon és toron aktivitáskoncentrációk az III.4-2. ábrán láthatók. A Pylon AB-5 műszerrel mért átlagos radonkoncentráció  $814 \pm 10 \text{ Bq m}^{-3}$ , az átlagos toronkoncentráció  $18\,409 \pm 48 \text{ Bq m}^{-3}$  volt. A nyomdetektorok kiértékelését követően meghatároztam a kalibrációs faktorokat, melyek a III.4-3. ábrán láthatók. Az 5. detektor esetén kiugróan magas kalibrációs faktort kaptam radonra ( $18,74 \pm 0,11 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ ), ami alapján arra a következtetésre jutottam, hogy a detektor diffúziós kamrája nem működött megfelelően, ezért ezt a detektort kihagytam az értékelésből (a III.4-3. ábrán sem szerepel, és az átlagszámításban sem számoltam vele). Az átlagos kalibrációs faktorok radonra  $2,52 \pm 0,006 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ , míg toronra  $2,45 \pm 0,001 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ .



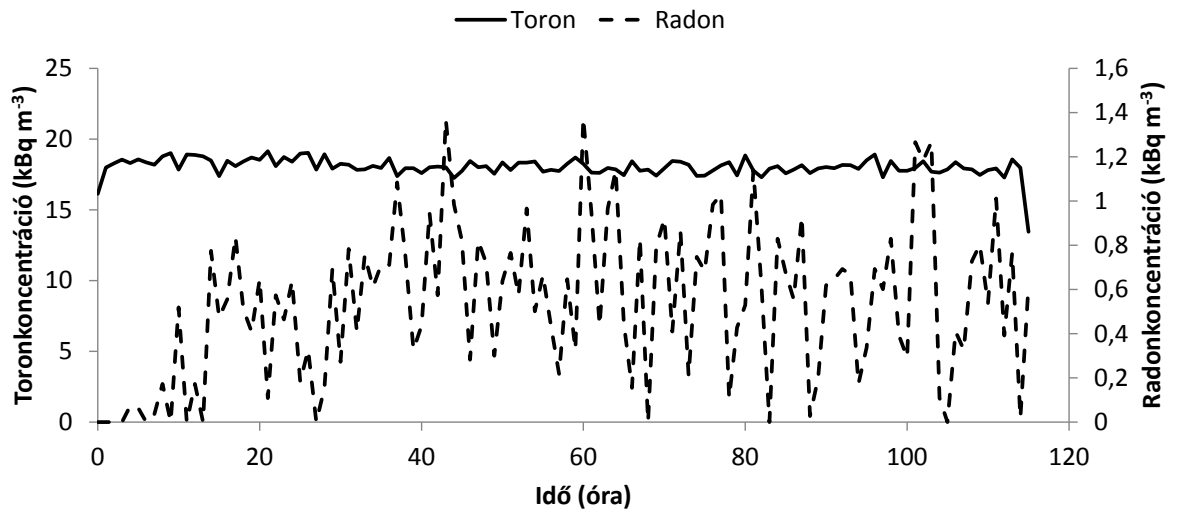
III.4-2. ábra: A Sarad EQF 3220 monitor által mért radon és toron aktivitáskoncentrációk a mérési idő függvényében (1. kalibrációs mérés)



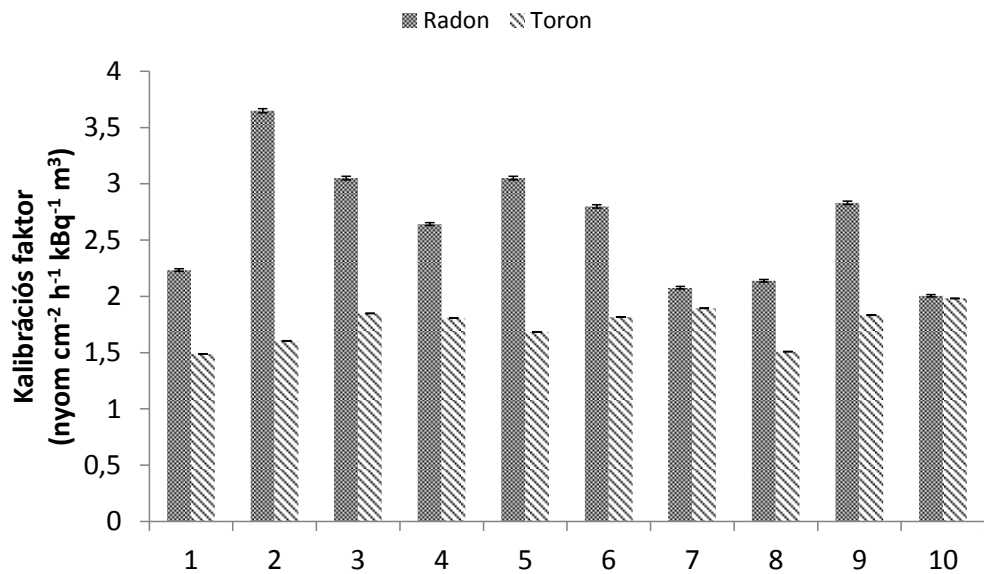
III.4-3. ábra: A számított radon és toron kalibrációs faktorok (1. kalibrációs mérés)

A kalibrációt egy későbbi időpontban megismételtem. A Sarad EQF 3220 monitor által mért értékek az III.4-4. ábrán láthatók. A Pylon AB-5 műszerrel mért átlagos radonkoncentráció  $536 \pm 6 \text{ Bq m}^{-3}$ , míg a toronkoncentráció  $18\,036 \pm 38 \text{ Bq m}^{-3}$  volt. Az eredmények alapján ismét meghatároztam a kalibrációs faktorokat (III.4-5. ábra). Az átlagos kalibrációs faktor radonra  $2,65 \pm 0,004 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ , míg toronra  $1,75 \pm 0,001 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ . Az előző mérés során számított átlagos kalibrációs faktorokat ( $2,52 \pm 0,006 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$  és  $2,45 \pm 0,001 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ ) felhasználva az itt kapott nyomszámokból kiszámítottam az aktivitáskoncentrációkat. Ezek átlaga radonra  $644 \pm 0,5 \text{ Bq m}^{-3}$ , míg toronra  $12\,810 \pm 2 \text{ Bq m}^{-3}$ . A mért és számított értékek közti különbséget az III.4-6. és III.4-7. ábrák szemléltetik, az aktivitáskoncentráció értékeket és a kalibrációs faktorokat pedig a III.4-1. táblázat tartalmazza. Ezek alapján elmondható, hogy a számított radonkoncentrációk  $0,1 \text{ kBq m}^{-3}$ -rel fölötte, míg a toronkoncentrációk  $5 \text{ kBq m}^{-3}$ -rel alatta vannak a mért értékeknek, tehát a módszer még pontosításra szorul, melyhez további nagyszámú kalibrációs mérés szükséges. Ennek ellenére jó egyezés látható az eredmények között, tehát a meghatározott kalibrációs faktorok a későbbi aktivitásbecslésekhez felhasználhatók. Azonban meg kell állapítani, hogy a két kalibrációs mérés során kiszámított kalibrációs faktorok közötti eltérés nem elhanyagolható (radon esetén  $0,13 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ , toron esetén  $0,7 \text{ nyom cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ kBq}^{-1} \text{ m}^3$ ). Fontos feladat tehát a továbbiakban a kalibrációs faktorok meghatározása különböző detektoranyagok és

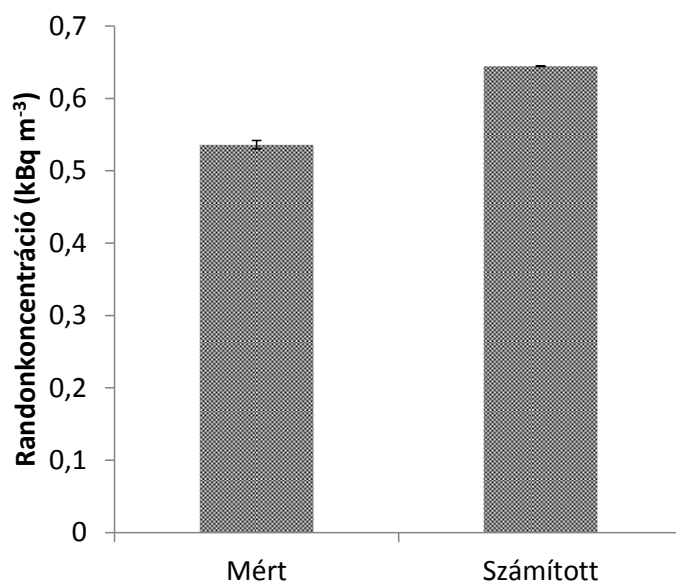
diffúziós kamrák alkalmazása esetén további nagyszámú kalibrációs mérésen keresztül, a módszer pontosítása céljából.



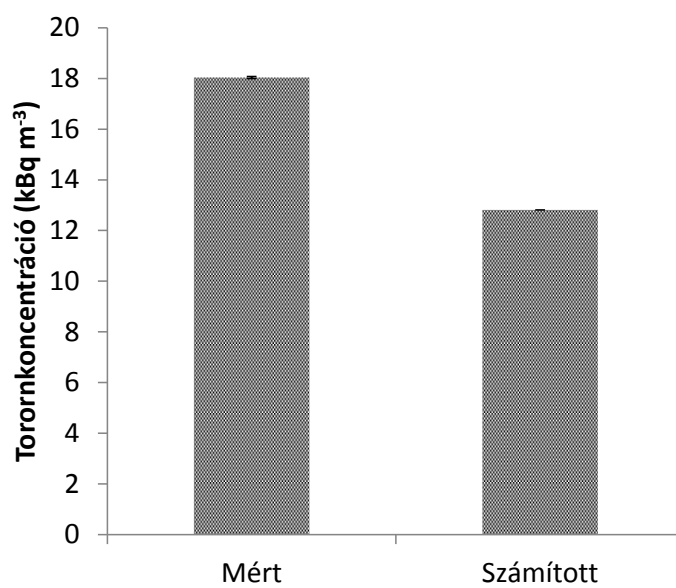
III.4-4. ábra: A Sarad EQF 3220 monitor által mért radon és toron aktivitáskoncentrációk (2. kalibrációs mérés)



III.4-5. ábra: A számított radon és toron kalibrációs faktorok (2. kalibrációs mérés)



III.4-6. ábra: A mért és számított radon aktivitáskoncentrációk összehasonlítása



III.4-7. ábra: A mért és számított toron aktivitáskoncentrációk összehasonlítása

III.4-1. táblázat: A kalibrációs tesztmérések eredményei

	1. mérés		2. mérés	
	Radon	Toron	Radon	Toron
Mért átl. akt. konc. (Bq m <sup>-3</sup> )	814 ± 10	18 409 ± 48	536 ± 6	18 036 ± 38
Átl. kal. faktor (nyom cm <sup>-2</sup> h <sup>-1</sup> kBq <sup>-1</sup> m <sup>3</sup> )	2,52 ± 0,006	2,45 ± 0,001	2,65 ± 0,004	1,75 ± 0,001
Számított akt. konc. (Bq m <sup>-3</sup> )	–	–	644 ± 0,5	12 810 ± 2

### III.4.3. Toronmonitorok kimutatási határának meghatározása

A mérési eredmények értelmezése szempontjából elengedhetetlen a releváns statisztikus értékek (döntési küszöb és a kimutatási határ, konfidencia intervallum) meghatározása. Ezek kiszámítására nyomdetektoros radonmérés esetén az ISO/FDIS 11665/4:2011(E) szabvány tesz ajánlásokat, amely az ionizáló sugármérések kimutatási határa meghatározásának általános elveiről szóló ISO 11929-7:2005(E) szabvány alapján került kidolgozásra [129, 130]. A módszert alkalmazva egyidejű radon-toron mérésre bebizonyosodott, hogy az így számított statisztikus értékek nem adnak kielégítő eredményt, mivel a módszer nem veszi figyelembe, hogy a mért toronkoncentráció befolyásolja a radonra számított paramétereket (mivel emeli a mérés háttérét), és fordítva [78, 131]. Ennek kiküszöbölésére, a szabvány továbbfejlesztéseként, kiadták az ISO 16641:2014(E) szabványt, amely ezt a hatást is figyelembe veszi, és ez alapján meghatározhatók az alkalmazott módszer statisztikus értékei szimultán radon-toron mérés esetén. A szabvány honosítását 2016-ban végezték el (MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány [5]).

A továbbiakban a szabvány által ajánlott számításokat teszteltem valós mérési szituációban, illetve kalibráció esetén.

#### III.4.3.1. Számítási módszer

A számításokat az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány előírásai alapján végeztem. A szabvány ajánlásai alapján a releváns statisztikus értékeket a következőkben bemutatottak alapján kell megadni.

## Átlagos aktivitáskoncentráció értékek

$$\begin{aligned}\overline{C_{Rn}} &= (d_L - \bar{b}) \omega_1 - (d_H - \bar{b}) \omega_2 \quad (\text{III.4-3}) \\ \omega_1 &= \frac{F_{Tn2}}{t \beta}; \omega_2 = \frac{F_{Tn1}}{t \beta}; \beta = F_{Rn1} F_{Tn2} - F_{Rn2} F_{Tn1}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\overline{C_{Tn}} &= (d_H - \bar{b}) \omega_3 - (d_L - \bar{b}) \omega_4 \quad (\text{III.4-4}) \\ \omega_3 &= \frac{F_{Rn1}}{t \beta}; \omega_4 = \frac{F_{Rn2}}{t \beta}\end{aligned}$$

ahol  $d_L$  az alacsony légcserearányú kamrához tartozó nyomsűrűség (nyom  $\text{cm}^{-2}$ );  $d_H$  a magas légcserearányú kamrához tartozó nyomsűrűség (nyom  $\text{cm}^{-2}$ );  $\bar{b}$  a háttér nyomsűrűsége (nyom  $\text{cm}^{-2}$ );  $t$  az expozíciós idő (h);  $F_{Rn1}$  az alacsony légcserearányú kamrához tartozó Rn-222 kalibrációs faktor (nyom  $\text{cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3$ );  $F_{Rn2}$  a magas légcserearányú kamrához tartozó Rn-222 kalibrációs faktor (nyom  $\text{cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3$ );  $F_{Tn1}$  az alacsony légcserearányú kamrához tartozó Rn-220 kalibrációs faktor (nyom  $\text{cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3$ );  $F_{Tn2}$  a magas légcserearányú kamrához tartozó Rn-220 kalibrációs faktor (nyom  $\text{cm}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3$ ).

## Standard bizonytalanság

$$u(\overline{C_{Rn}}) = \sqrt{\begin{aligned} &\omega_1^2 (u^2(d_L) + u^2(b)) - 2 \omega_1 \omega_2 u^2(b) + \omega_2^2 (u^2(d_H) + u^2(b)) \\ &+ (d_L - b)^2 u^2(\omega_1) + (-d_H + b)^2 u^2(\omega_2) \end{aligned}} \quad (\text{III.4-5})$$

$$u^2(\omega_1) = \frac{1}{\beta^4 t^2} \{ (\beta - F_{Rn2} F_{Rn1})^2 u^2(F_{Tn2}) + F_{Tn2}^4 u^2(F_{Rn1}) + F_{Tn1}^2 F_{Tn2}^2 u^2(F_{Rn2}) \\ + F_{Rn2}^2 F_{Tn2}^2 u^2(F_{Tn1}) \}$$

$$u^2(\omega_2) = \frac{1}{\beta^4 t^2} \{ (\beta - F_{Rn1} F_{Tn2})^2 u^2(F_{Tn1}) + F_{Tn2}^4 u^2(F_{Rn2}) + F_{Tn1}^2 F_{Tn2}^2 u^2(F_{Rn1}) \\ + F_{Rn1}^2 F_{Tn1}^2 u^2(F_{Tn2}) \}$$

$$u(\bar{C}_{Tn}) = \sqrt{\frac{\omega_3^2 (u^2(d_H) + u^2(b)) - 2 \omega_3 \omega_4 u^2(b) + \omega_4^2 (u^2(d_L) + u^2(b))}{+(d_H - b)^2 u^2(\omega_3) + (-d_L + b)^2 u^2(\omega_4)}} \quad (\text{III.4-6})$$

$$u^2(\omega_3) = \frac{1}{\beta^4 t^2} \{(\beta - F_{Rn1} F_{Tn1})^2 u^2(F_{Rn1}) + F_{Rn1}^4 u^2(F_{Tn2}) + F_{Rn1}^2 F_{Tn1}^2 u^2(F_{Rn2}) + F_{Rn1}^2 F_{Rn2}^2 u^2(F_{Tn1})\}$$

$$u^2(\omega_4) = \frac{1}{\beta^4 t^2} \{(\beta - F_{Rn2} F_{Tn1})^2 u^2(F_{Rn2}) + F_{Rn2}^4 u^2(F_{Tn1}) + F_{Rn2}^2 F_{Tn2}^2 u^2(F_{Rn1}) + F_{Rn1}^2 F_{Rn2}^2 u^2(F_{Tn2})\}$$

### Döntési küszöb

$$\bar{C}_{Rn}^* = k_{1-\alpha} \sqrt{\frac{\omega_1^2 u^2(b) - 2 \omega_1 \omega_2 u^2(b) + \omega_2^2 (u^2(d_H) + u^2(b))}{+\frac{(d_H^2 - 2b d_H + b^2) \omega_2^2}{\omega_1^2} u^2(\omega_1) + (-d_H + b)^2 u^2(\omega_2)}} \quad (\text{III.4-7})$$

$$\bar{C}_{Tn}^* = k_{1-\alpha} \sqrt{\frac{\omega_3^2 u^2(b) - 2 \omega_3 \omega_4 u^2(b) + \omega_4^2 (u^2(d_L) + u^2(b))}{+\frac{(d_L^2 - 2b d_L + b^2) \omega_4^2}{\omega_3^2} u^2(\omega_3) + (-d_L + b)^2 u^2(\omega_4)}} \quad (\text{III.4-8})$$

ahol  $k_{1-\alpha}$  az  $1-\alpha$  valószínűség standardizált normál eloszlásának kvantilisei ( $\alpha$  az elsőfajú hiba valószínűsége, alapértelmezett esetben  $\alpha = 0,05$ , így  $k_{1-\alpha} = 1,65$ ).

### Kimutatási határ

$$\bar{C}_{Rn}^\# = \frac{2 \bar{C}_{Rn}^* + k^2 \left\{ \frac{(2 d_H - 2 b) \omega_2 u^2(\omega_1)}{\omega_1^2} \right\}}{1 - k^2 \frac{u^2(\omega_1)}{\omega_1^2}} \quad (\text{III.4-9})$$

$$\bar{C}_{Tn}^\# = \frac{2 \bar{C}_{Tn}^* + k^2 \left\{ \frac{(2 d_L - 2 b) \omega_4 u^2(\omega_3)}{\omega_3^2} \right\}}{1 - k^2 \frac{u^2(\omega_3)}{\omega_3^2}} \quad (\text{III.4-10})$$

ahol  $k = k_{1-\alpha} = k_{1-\beta}$  az  $1-\alpha$  és  $1-\beta$  valószínűség standardizált normál eloszlásának kvantilisei ( $\alpha$  és  $\beta$  az első- ill. másodfajú hiba valószínűsége, alapértelmezett esetben  $\alpha = \beta = 0,05$ , így  $k = 1,65$ ).

### **Konfidencia intervallum**

$$\bar{C}^{<>} = \bar{C} \pm k_{1-\gamma/2} \times u(\bar{C}) \quad (\text{III.4-11})$$

ahol  $k_{1-\gamma/2}$  az  $1-\gamma/2$  valószínűség standardizált normál eloszlásának kvantilisei ( $1-\gamma$  annak a valószínűsége, hogy a valós értéket a konfidencia intervallum tartalmazza, alapértelmezett esetben  $\gamma = 0,05$ , így  $k_{1-\gamma/2} = 1,96$ ).

A fenti képletekből látszik, hogy a kimutatási határ végső soron az alkalmazott mérési időtől és a kapott nyomszámoktól függ, melyek alapján két, jelentősen eltérő paraméterekkel jellemezhető mérési szituáció különböztethető meg:

1. Valós mérési szituáció, relatíve nagy mérési idővel (néhány hónap), környezeti aktivitáskoncentráció szintekkel (néhány száz  $\text{Bq m}^{-3}$ );
2. Kalibráció RRI toronkamrában, relatíve kis mérési idővel (kb. 100 h), a környezeti szintnél jelentősen nagyobb toron- (kb. 20 000  $\text{Bq m}^{-3}$ ) és átlagos radonaktivitás-koncentrációval (néhány száz  $\text{Bq m}^{-3}$ ).

A kimutatási határ meghatározását elvégeztem mindkét mérési helyzetre. Valós mérési körülmények között általában hosszú (néhány hónapos) mérési időt alkalmazunk, ezért a kimutatási határ értékek várhatóan kisebbek lesznek (fordított arányosság), mint kalibráció esetén, ahol a mérési idő viszonylag rövid (kb. 100 óra). A környezeti toronszintek azonban relatíve kicsik (a radonhoz képest), így sok esetben kimutatási határ alatti értékeket kaphatunk. Szemben a kalibrációs helyzettel, ahol a mesterségesen beállított nagy toronkoncentrációk (kb. 20 000  $\text{Bq m}^{-3}$ ) melletti átlagos radonkoncentrációk miatt a radonmérés eredménye lehet kimutatási határ alatti.



### **III.4.3.2. A toronmonitorok kimutatási határának meghatározása során kapott eredmények**

#### **Valós mérés**

A számítások során egy valós mérési sorozat eredményeit értékeltem ki, mely során egyidejű radon-toron mérést végeztek Raduet típusú monitorokkal. 63 db detektorpár eredményeit értékeltem ki. A mérési idő 2136 – 3384 h között változott (átlag: 2875 h). A kapott eredményeket az III.4-1. táblázat foglalja össze. A részletes mérési eredmények a függelék F.3-1-4. ábráin láthatók. A kimutatási határ feletti- és alatti értékek megoszlását a III.4-2. táblázat mutatja be.

*III.4-1. táblázat: Valós mérési helyzetben végzett nyomdetektoros radon/toron mérés eredményeinek és a számított statisztikus paraméterek összesítése*

	Radonmérés			Toronmérés		
	AK	DK	KH	AK	DK	KH
Min.	20	2	4	-228*	7	16
Max.	847	58	118	328	278	602
Átlag	104	10	20	28	35	75

Jelmagyarázat:

AK – aktivitáskoncentráció ( $\text{Bq m}^{-3}$ )

DK – döntési küszöb ( $\text{Bq m}^{-3}$ )

KH – kimutatási határ ( $\text{Bq m}^{-3}$ )

\*A negatív koncentrációérték feltehetően a radioaktivitás mérések sztochasztikus jellegéből adódik, mivel egyes esetekben viszonylag magas radon- és elhanyagolható toronkoncentráció esetén a magas légcserearányú kamra detektorának nyomszáma (radon és toron összegét méri) kevesebbnek adódott, mint az alacsony légcserearányúé (csak radont mér). (Ez a magyarázata a III.4-9. ábrán látható negatív értékeknek is.)

III.4-2. táblázat: Valós mérési helyzetben végzett nyomdetektoros radon/toron mérés statisztikai értékelése

	<b>Radonmérés</b>	<b>Toronmérés</b>
Összes mérés	63	63
DK feletti érték	63 (100 %)	26 (41 %)
DK alatti érték	0 (0 %)	37 (59 %)
KH feletti érték	61 (97 %)	17 (27 %)
KH alatti érték	2 (3 %)	46 (73 %)

Látható, hogy valós mérési szituációban a radonmérések elhanyagolható százalékában kaptam csak kimutatási határ alatti értékeket, míg a toronmérések esetében az eredmények csaknem negyedrésze kimutatási határ alatti. Ennek oka, hogy a relatíve nagy radonszintek mellett elhanyagolható mennyiségű toron volt jelen az esetek nagy részében, így a radon jelentősen növelte a toronra vonatkozó háttérértékeket, így a kimutatási határt, míg fordítva a hatás nem jelentős. A döntési küszöb és kimutatási határ értékek viszonylag alacsonyak (átlagosan 10 ill. 20 Bq m<sup>-3</sup> radonra, valamint 35 ill. 75 Bq m<sup>-3</sup> toronra, rendre) a nagy mérési időnek és alacsony aktivitáskoncentráció-szinteknek köszönhetően.

### **Kalibráció**

A környezeti szintű és a kalibrációs helyzetben történő kimutatási határok közti eltérés szemléltetése céljából elvégeztem az III.4.2. fejezetben bemutatott 2. kalibrációs mérés eredményeinek statisztikai elemzését is, melyet a III.4-3. táblázatban foglaltam össze. A nyomdetektoros kalibrációs radon/toron mérés részletes eredményei a függelék F.3-5 ábráján láthatók.

*III.4-3. táblázat: Kalibrációs céllal végzett nyomdetektoros radon/toron mérés eredményeinek és a számított statisztikai paraméterek összesítése*

	Radonmérés			Toronmérés		
	AK	DK	KH	AK	DK	KH
Min.	428	919	1850	10921	91	197
Max.	776	1206	2428	14534	163	353
Átlag	562	1078	2171	12810	119	257

Jelmagyarázat:

AK – aktivitáskoncentráció ( $\text{Bq m}^{-3}$ )

DK – döntési küszöb ( $\text{Bq m}^{-3}$ )

KH – kimutatási határ ( $\text{Bq m}^{-3}$ )

Ebben az esetben az összes radonmérés eredménye kimutatási határ (döntési küszöb) alatti, míg toronmérés esetén az összes érték jóval afeletti. Ennek oka, hogy a jelentősen megnövelt toronszintek zavaróan hatnak a radonmérésre, és növelik annak kimutatási határát, míg a toronaktivitás-koncentráció mellett elhanyagolható radonmennyiség hatása nem jelentős. A kapott döntési küszöb és kimutatási határ értékek (különösen radonra) ebben az esetben jóval magasabbak (átlagosan 1078 ill. 2171  $\text{Bq m}^{-3}$  radonra, valamint 119 ill. 257  $\text{Bq m}^{-3}$  toronra, rendre) az alacsony mérési időnek (115,7 óra) és a magas toronaktivitás-koncentrációnak köszönhetően.

#### **III.4.3.3. A toronmonitorok kimutatási határának meghatározása során kapott eredmények értékelése**

Az eredmények alapján látható, hogy az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány által ajánlott számítási módszer szerinti kimutatási határ meghatározás eltérő eredményre vezet valós és kalibrációs mérés esetén, melynek oka, hogy a kétféle mérési helyzetben eltérő paramétereket alkalmaztunk. Kalibráció során az így számított döntési küszöb és kimutatási határ értékek viszonylag magasnak adódnak a valós körülményekhez képest eltérő paraméterek alkalmazása miatt, viszont bebizonyosodott, hogy – amennyiben toronkalibráció a cél – ez nem jelent problémát, hiszen az extrém magas mesterséges toronszintek miatt az eredmények jóval kimutatási határ feletti lesznek toronmérésre. Környezeti szintű méréseknél, hosszabb expozíciós idő alkalmazásával a statisztikus értékek is természetesen kisebbnek adódnak.

Végeredményben megállapítható, hogy a kimutatási határ értékét az izotópok aktivitáskoncentrációi és az expozíciós idő együttesen befolyásolja. Természetesen környezeti méréseknél az előbbi adott, utóbbit kellően nagyra megválasztva a kimutatási határ csökkenthető. Kalibráció esetén a beállított aktivitáskoncentráció-szintek nagysága meghatározza a választandó mérési időt a kiértékeléshez optimális nyomsűrűség elérése érdekében. Ezek arányának megfelelő megválasztásával a kimutatási határ értéke változtatható.

Mivel nagyságrendi különbség lehet a kimutatási határok között a különböző paraméterekkel rendelkező mérések esetén, a módszerek hatékonyságának ez alapján történő összehasonlítása semmiképp sem lehetséges. A kimutatási határ nagyságától függetlenül mind a környezeti mérés, mind a kalibráció alkalmas lehet az adott célra, de a kimutatási határ meghatározását minden esetben el kell végezni ennek megítélésére. Amennyiben mégis a különböző célú módszerek kimutatási határ alapján történő összevetése a cél, kalibráció esetén a két izotóp egymást zavaró hatása miatt célszerű hosszabb kalibrációs időtartamot, és alacsonyabb aktivitáskoncentráció-szinteket beállítani, a kimutatási határ értékek csökkentése céljából.

Összességében tehát elmondható, hogy az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány által ajánlott számítási módszer alkalmas a releváns statisztikus értékek meghatározására mind valós mérési szituációban, mind kalibrációs célra, de a különböző paraméterezéssel végzett mérések ez alapján történő összevetésével óvatosan kell bánni.

#### ***III.4.3.4. Az aktivitáskoncentráció hatása a kimutatási határra***

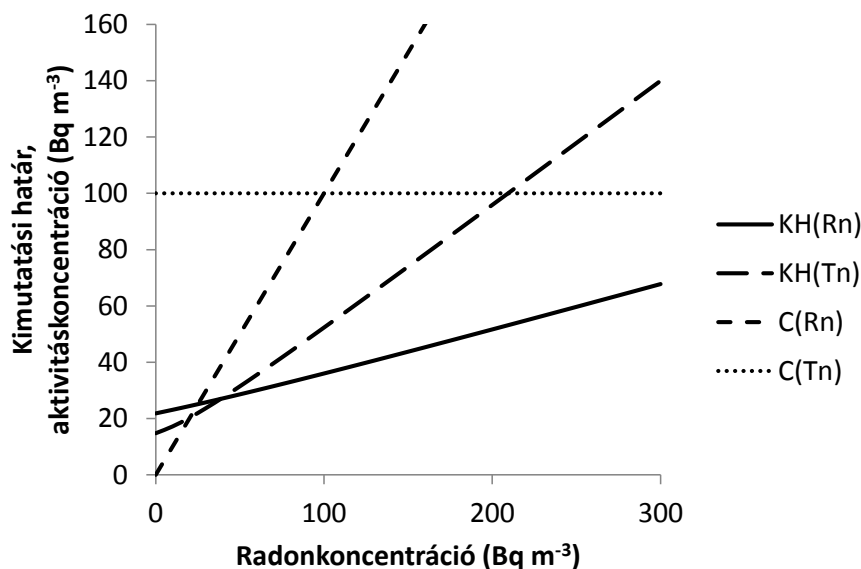
A kimutatási határ értékét sok paraméter befolyásolja. Általánosságban függ a mérési időtől, a kiértékelt detektorfelület nagyságától, valamint a háttér aktivitáskoncentrációtól. Ez utóbbi, mint azt korábban már kifejtettem, egyidejű radon-toron mérés esetén különös figyelmet érdemel, mivel a radonmérés esetén a toronkoncentráció háttérként jelentkezik, és fordítva.

A mérés érzékenységének növeléséhez fontos lenne tudni, hogy melyik paraméter milyen mértékben befolyásolja a kimutatási határ értékét, ezért modellszámításokat végeztem ennek feltárására. Állandó toronkoncentráció esetén vizsgáltam a radonkoncentráció változtatásának hatását a toronmérésre (ill. radonmérésre) vonatkozó kimutatási határ értékére, különböző expozíciós idő és detektorfelület esetén, majd a

vizsgálatot elvégeztem rögzített radonkoncentráció és változtatott toronkoncentráció esetén. A következőkben ezek eredményeit ismertetem.

### Radonkoncentráció hatása

A számítások során  $100 \text{ Bq m}^{-3}$  toronkoncentrációt feltételeztem, és az MSZ EN ISO 16641:2016 szabványban ajánlott módszerrel modelleztem a kimutatási határ értékek alakulását különböző radonszintek esetén. Első lépésben a többi paramétert nem változtattam, a mérési időt 100 órának, a detektorfelületet  $0,01 \text{ cm}^2$ -nek vettem. Az eredményeket a III.4-1. ábra mutatja be.



III.4-1. ábra: A radonkoncentráció változásának hatása a radon- és toronmérés kimutatási határára, állandó toronkoncentráció ( $100 \text{ Bq m}^{-3}$ ) esetén, állandó expozíciós idő (100 h) és detektorfelület ( $0,01 \text{ cm}^2$ ) alkalmazásával (a függőleges tengelyen az értékeket  $160 \text{ Bq m}^{-3}$ -ig jelenítettem meg a jobb áttekinthetőség miatt)

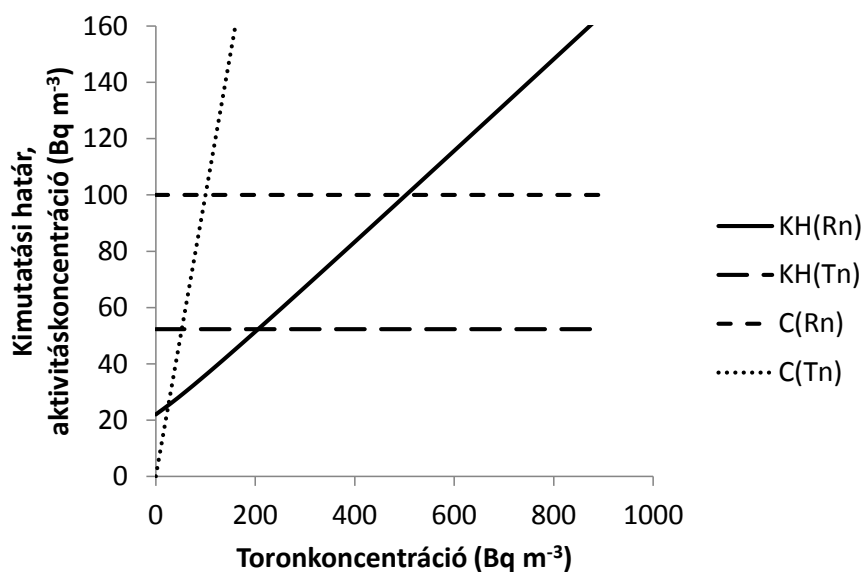
Látható, hogy mind a radon-, mind a toronmérésre vonatkozó kimutatási határ közel lineárisan nő a radonkoncentrációval. Kezdetben a toronmérés kimutatási határa a radonmérés kimutatási határa alatt van, de meredekebben emelkedik, és kb.  $40 \text{ Bq m}^{-3}$ -es radonkoncentrációnál meghaladja azt. Kis radonszinteknél értelemszerűen kimutatási határ alatti eredményeket kapunk (a toron hatása miatt), egészen kb.  $30 \text{ Bq m}^{-3}$  értékig. A diagramról ez úgy olvasható le, ha a radonmérés kimutatási határ görbéje mellett

ábrázoljuk a radonkoncentráció görbét, ami gyakorlatilag a 45°-os egyenes. A két görbe metszéspontjához tartozó radonkoncentráció értéknél lépi át a koncentráció a kimutatási határ görbét, tehát az ez alatti értékek kimutatási határ alattiak. A toronmérés kimutatási határa kb. 200 Bq m<sup>-3</sup> radonkoncentrációnál haladja meg a 100 Bq m<sup>-3</sup> beállított koncentrációsíntet. Ez azt jelenti, hogy az ennél nagyobb radonkoncentrációk esetén kimutatási határ alatti értékeket kapunk.

Következő lépésben megvizsgáltam az expozíciós idő és a detektorfelület változtatásának hatását a kimutatási határ értékére. Ezek az eredmények a függelék F.3-6-7. ábráin láthatók. A diagramokból az látszik, hogy mind az expozíciós idő, mind a detektorfelület főként kisebb (0 – 100 Bq m<sup>-3</sup>) radonkoncentrációk esetén okoz jelentősebb hatást a kimutatási határra, ezért ezt a tartományt kinagyítva is ábrázoltam. Látható, hogy a hatás itt sem mindig releváns, főként az igen kis radonkoncentrációk esetén van némi változás. A toronmérés kimutatási határa már 500 órás expozíciós idő, ill. 0,1 cm<sup>2</sup> detektorfelület esetén „nullához közelít” az igen kis (~ 0 Bq m<sup>-3</sup>) radonkoncentrációk esetén, a radonmérés kimutatási határában nincs jelentős változás. Általánosságban elmondható, hogy mind az expozíciós idő, mind a detektorfelület növelése csökkenti a kimutatási határt, viszont a csökkentés mértéke egy határértéken maximalizálódik. Jelen esetben a kimutatási határ 500 órás expozíció és 0,1 cm<sup>2</sup> detektorfelület esetén minimális.

### **Toronkoncentráció hatása**

A fenti vizsgálatnak megfelelően elvégeztem a számításokat állandó radonkoncentráció (100 Bq m<sup>-3</sup>), és változó toronkoncentráció esetén is. Első lépésben állandó expozíciós időt és detektorfelületet alkalmaztam (100 h, 0,01 cm<sup>2</sup>). Az eredmények a III.4-2. ábrán láthatók.



III.4-2. ábra: A toronkoncentráció változásának hatása a radon- és toronmérés kimutatási határára, állandó radonkoncentráció ( $100 \text{ Bq m}^{-3}$ ) esetén, állandó expozíciós idő (100 h) és detektorfelület ( $0,01 \text{ cm}^2$ ) alkalmazásával (a függőleges tengelyen az értékeket  $160 \text{ Bq m}^{-3}$ -ig jelenítettem meg a jobb áttekinthetőség miatt)

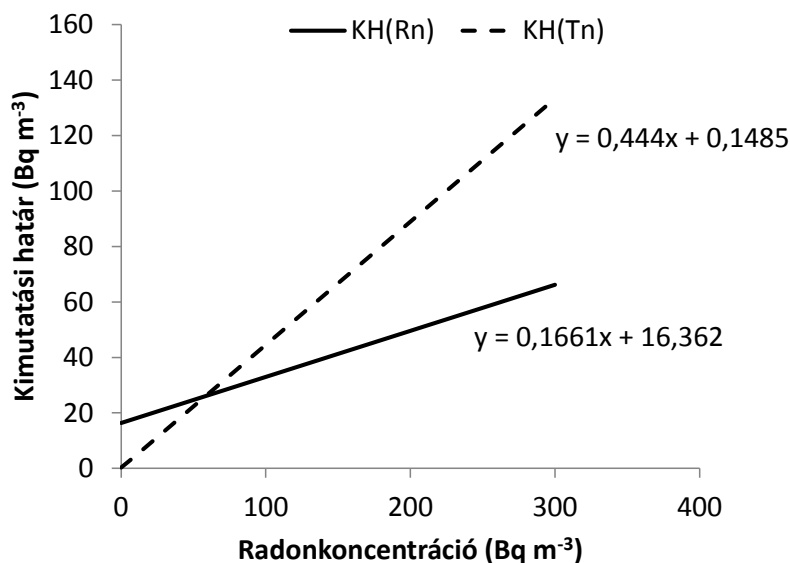
A legszembetűnőbb különbség a radonkoncentráció hatásához képest az, hogy a toronkoncentráció változtatása nem befolyásolja a toronmérés kimutatási határát. Ez azt jelenti, hogy az aktuális radonkoncentráció ismeretében egyszerűen becsülhető a toronmérés kimutatási határa. Az ábrán látható, hogy a  $\text{KH(Tn)}/\text{C(Rn)}$  arány  $\sim 0,5$ , tehát a toronmérés kimutatási határa az aktuális radonkoncentráció felének becsülhető. (Radon esetén már nem ilyen egyértelmű a helyzet, mert a III.4-1. ábrán látható, hogy a radonkoncentráció változása befolyásolja a radonmérés kimutatási határát.)

Az expozíciós idő és a detektorfelület változtatásának hatása a függelék F.3-8-9. ábráin látható. Mivel a toronmérés kimutatási határa nem függ a toronkoncentrációtól, a kimutatási határ értékeket az expozíciós idő és a detektorfelület függvényében ábrázoltam. A diagramokon az látszik, hogy a kimutatási határ az expozíciós idő (és feltételezhetően a detektorfelület) növelésével exponenciálisan csökken. Ez is megerősíti az előzőekben közölt állítást, miszerint egy határon túl nem várható további kimutatási határ csökkenés ezek növelésével. Ezek alapján is 500 órás expozíció és  $0,1 \text{ cm}^2$ -es detektorfelület esetén éri el a kimutatási határ a minimumát. A radonmérés kimutatási határára gyakorolt hatás ebben az esetben sem jelentős.

## Teljes koncentrációfüggés becslése

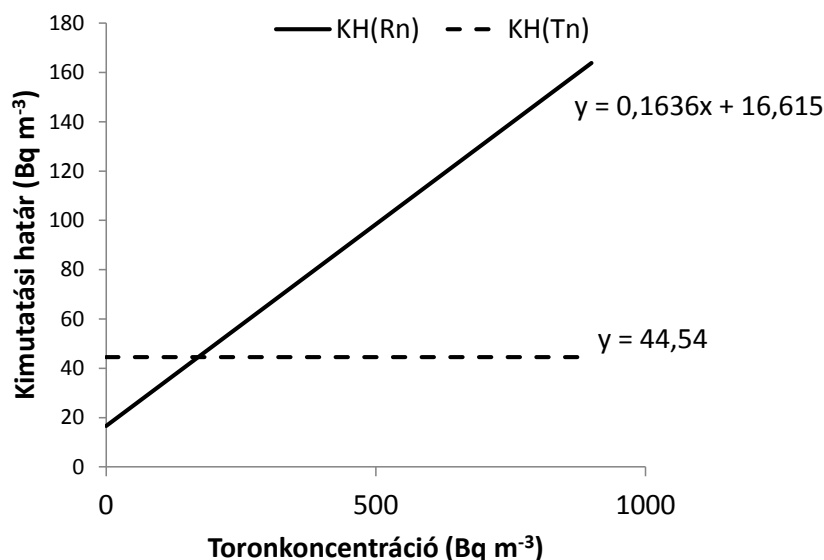
Az előzőekben megállapítást nyert, hogy a radonmérés kimutatási határa a radon- ill. toronkoncentráció lineáris függvénye, míg a toronmérés kimutatási határa csak a radonkoncentrációtól függ lineárisan. Utóbbira gyors becslésként az aktuális radonkoncentráció felét ajánlottam. Ez első közelítésként kielégítőnek mondható, azonban ez pontosabban is megadható, valamint szükséges lenne a radonmérés kimutatási határának becslése is a koncentrációkból. Ezért megfigyeléseim alapján empirikus összefüggést ajánlok a kimutatási határ értékek becslésére a radon- ill. toronkoncentrációkból.

Ehhez első lépésben nézzük meg újra, hogy függenek a kimutatási határ értékek az egyes koncentrációktól (III.4-3-4. ábrák). Ez esetben 500 órás expozíciót és  $0,1 \text{ cm}^2$  detektorfelületet alkalmaztam, mivel az előzőekben megállapítottak szerint a kimutatási határ ezen értékekkel minimális. A rögzített koncentráció az előzőekhez hasonlóan  $100 \text{ Bq m}^{-3}$ . A diagramokon feltüntettem az egyenesek egyenleteit is.



III.4-3. ábra: A kimutatási határ értékek radonkoncentráció függése, állandó toronkoncentráció ( $100 \text{ Bq m}^{-3}$ ) esetén, állandó expozíciós idő (500 h) és detektorfelület ( $0,1 \text{ cm}^2$ ) alkalmazásával





III.4-4. ábra: A kimutatási határ értékek toronkoncentráció függése, állandó radonkoncentráció ( $100 \text{ Bq m}^{-3}$ ) esetén, állandó expozíciós idő (500 h) és detektorfelület ( $0,1 \text{ cm}^2$ ) alkalmazásával

A kimutatási határ értékek radonkoncentráció függésére a következő egyenleteket kaptam:

$$KH_{Rn} = 0,1661C_{Rn} + 16,362 \quad (\text{III.4-12})$$

$$KH_{Tn} = 0,444C_{Rn} + 0,1485 \quad (\text{III.4-13})$$

A toronkoncentráció függvényében a következő összefüggések írhatók:

$$KH_{Rn} = 0,1636C_{Tn} + 16,615 \quad (\text{III.4-14})$$

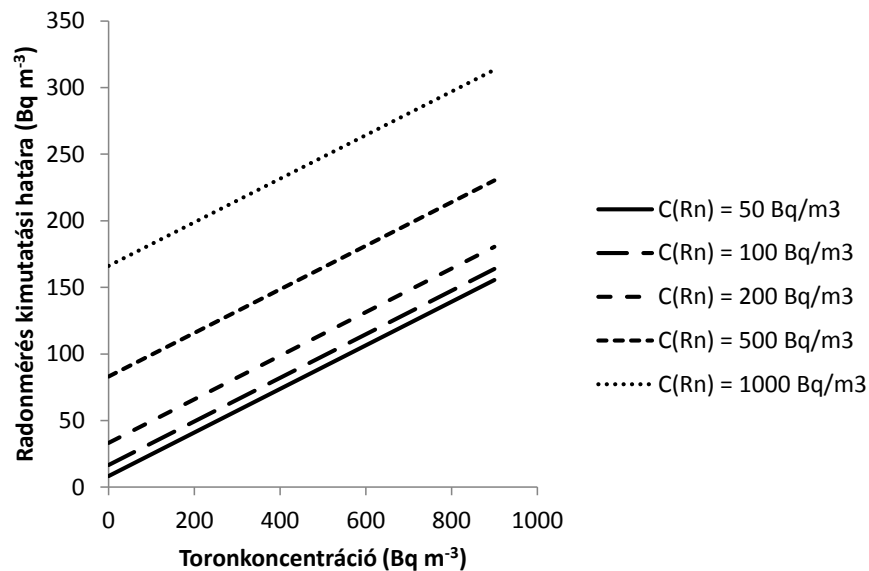
$$KH_{Tn} = 44,54 \quad (\text{III.4-15})$$

Látható, hogy az egyenletekben szereplő konstans értékek a másik paramétertől való függést fejezik ki. Így a fentiek „összefésülésével” a kimutatási határ értékek koncentrációfüggése a következő empirikus összefüggésekkel adható meg:

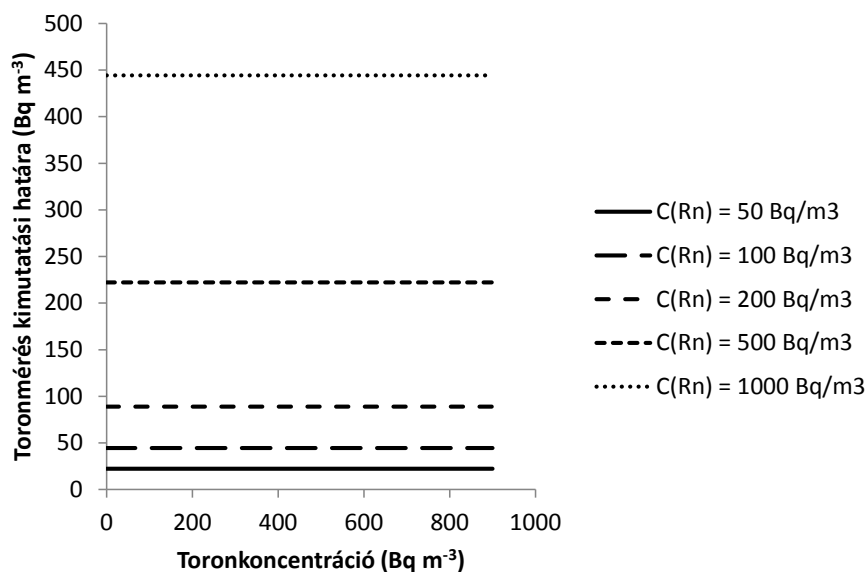
$$KH_{Rn} = 0,1661C_{Rn} + 0,1636C_{Tn} \quad (\text{III.4-16})$$

$$KH_{Tn} = 0,444C_{Rn} \quad (\text{III.4-17})$$

Tehát, ha ismerjük a mérendő koncentráció értékek nagyságát, a fenti összefüggésekkel egyszerűen becsülni tudjuk a várható kimutatási határ értékeket. Ez segíthet megítélni, hogy az alkalmazandó módszer alkalmas-e az adott mérési feladat elvégzésére. Fontos azonban megjegyezni, hogy a fenti empirikus összefüggés csak többi paraméter (expozíciós idő, detektorfelület) rögzítése esetén érvényes, azonban különböző paraméterkészletek esetén az azokra érvényes összefüggések megadhatók, így azokban az esetekben, amikor ezek az értékek nem változnak, a kimutatási határok egyszerűen becsülhetők. Azonban a statisztikus paraméterek pontos értékeit minden esetben az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány alapján ajánlott meghatározni. A fenti összefüggések könnyebb értelmezéséhez a III.4-5-6. ábrákon bemutatom a kimutatási határ értékek koncentrációfüggését.



III.4-5. ábra: A radonmérés kimutatási határának radon- (lásd: jelmagyarázat) és toronkoncentráció-függése (lásd: vízszintes tengely)



III.4-6. ábra: A toronmérés kimutatási határának radon- (lásd: jelmagyarázat) és toronkoncentráció-függése (lásd: vízszintes tengely)

A fentiek alapján megállapítható, hogy az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány által ajánlott módszer megfelel a releváns statisztikus értékek (standard bizonytalanság, döntési küszöb, kimutatási határ) meghatározására, mind kis, mind nagy koncentrációjú atmoszférában végzett, egyidejű radon-toron nyomdetektoros mérések esetén, a fent említett megfontolások figyelembe vételével.

A mérési eredmények értékelésénél általánosan megállapítható, hogy mind a kisebb, mind a nagyobb koncentrációjú mérések esetén a radonmérések csak elenyésző részben eredményeztek kimutatási határ alatti értékeket, míg a toronmérések túlnyomó részben kimutatási határ alattinak adódtak. Ennek oka az, hogy jellemzően (az adott mérési geometria alkalmazásával) a mért torontól származó nyomszám töredéke a radontól származónak, ezért a magas radonhátter miatt nem lehet a toron mérési eredményeit megbízhatóan értékelni. Ez gyakorlatilag nem jelent problémát azon felmérések esetében, ahol a cél az adott területek radon-toronszintjének általános vizsgálata – azok egészségügyi hatásainak vonatkozásában –, hiszen a kimutatási határ alatti toronkoncentrációk a radonhoz képest elhanyagolható toronszinteket jelentenek, így ebben az esetben ennek egészségügyi hatása elhanyagolható, további statisztikai vizsgálat nem szükséges. Ha azonban a cél kimondottan az adott területek toronszintjének – radontól függetlenül – és annak változásainak (pl. szezonális ingadozás, területi eloszlás stb.) meghatározása, valamint az eredmények statisztikai

elemzése, célszerű olyan módszert alkalmazni, amelyben a két izotóp mérése egymástól teljesen függetlenül történik (pl. fizikai szeparáció), így azok koncentrációi egymás kimutatási határ értékét nem befolyásolják.

#### **III.4.4. Az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány szerinti akkreditáció feltételei**

A vizsgáló és kalibráló laboratóriumokkal szemben támasztott követelményeket az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány rögzíti [133]. Amennyiben egy laboratórium a szabvány szerinti minősítést kíván szerezni, az a követelmények teljesülésének tételes igazolásán keresztül, akkreditációs eljárás során valósul meg. A szabvány előírásait figyelembe kell venni a laboratóriumban alkalmazott, valamint az újonnan kifejlesztett módszerek tekintetében is.

Amennyiben az általam kifejlesztett kalibrációs módszert MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szerinti akkreditációval rendelkező kalibráló laboratóriumban kívánjuk használni, a módszer megfelelőségét számos követelmény tekintetében igazolni kell. A következőkben tételesen ismertetem azokat az előírásokat, melyeket figyelembe vettem a módszer fejlesztése során, illetve amelyeket a későbbiekben kell teljesíteni a szabvány szerinti minősítés érdekében.

##### ***III.4.4.1. Környezeti feltételek***

A szabvány 5.3. fejezete írja le a laboratórium környezeti körülményeire vonatkozó feltételeket. Az 5.3.1. pont kimondja, hogy a környezeti körülmények nem befolyásolhatják kedvezőtlen mértékben a mérési eredményeket. A III.1. fejezetben bemutattam, hogy a kamrában a hőmérséklet- és páratartalom-szabályozás megoldott, valamint teszteltem a kamra tömítését, mely alapján megállapítottam, hogy a kamra a környezettől megfelelő mértékben izolálva van, ezáltal az 5.3.1. pont teljesül.

Az 5.3.2. pont arra vonatkozik, hogy a mérés szempontjából releváns környezeti paramétereket monitorozni, szabályozni és rögzíteni kell. Szintén a III.1. fejezet tartalmazza annak bemutatását, hogy a kamrában hőmérséklet- és páratartalom-mérő szenzort helyeztem el. A hőmérséklet-szabályozás a laboratóriumban üzemelő klímaberendezéssel, a páratartalom-szabályozás pedig a saját fejlesztésű szabályozórendszerrel megoldott, tehát az 5.3.2. pont is teljesül.

Az 5.3.3. pont szerint meg kell oldani a környezetében lévő magasabb aktivitású helyek megfelelő elkülönítését, valamint a keresztzennyeződés megakadályozását. A kalibráló kamra az alfa-spektrometriai laboratóriumban került elhelyezésre, melyben nyílt sugárforrásokkal és jelentős aktivitású mintákkal nem dolgoznak, így a toronkamra elszennyezése kizárható. A kamra szigetelése megakadályozza a torongáz és a leányelemek kijutását a kamrából, így az alfa-kamrák elszennyezésével sem kell számolni.

#### ***III.4.4.2. Alkalmazott módszerek és azok validálása***

Az 5.4.1. pont tartalmazza azokat az általános követelményeket, melyek a vizsgáló és kalibráló laboratóriumokban alkalmazott módszerekre vonatkoznak. Eszerint a laboratóriumnak rendelkeznie kell megfelelő eljárásokkal a mintavétel, anyagok kezelése, szállítása és tárolása, a mérési bizonytalanság becslése és az adatokra vonatkozó statisztikai vizsgálat tekintetében. A III.4.3. fejezetben bemutattam a statisztikai értékek meghatározására vonatkozó módszereket, melyekkel a módszer bizonytalansága és kimutatási határa kiszámítható. Ezeket kiegészítve a laboratóriumban alkalmazott általános eljárásrendekkel a laboratóriumi munkára és a laboratóriumban használt anyagok alkalmazására vonatkozóan, az 5.4.1. pont teljesíthető.

Szintén az 5.4.1. pont fogalmazza meg, hogy a laboratóriumban alkalmazott berendezések használatához szükséges információkat (instrukciók, használati utasítás stb.) a laboratóriumi személyzet rendelkezésére kell bocsátani, és naprakészen kell tartani. A kalibrációs kamra használatára vonatkozó instrukciók a III.4.1. fejezetben megtalálhatók. Az egyes műszerek (Pylon AB-5, Sarad EQF 3220 stb.) kezelési utasítása az intézetben rendelkezésre áll.

Az 5.4.3. pont szerint a laboratórium által fejlesztett módszerekhez pontos instrukciókat kell meghatározni, és ezeket megfelelően képzett személyzet rendelkezésére kell bocsátani. A módszerhez szükséges instrukciókat a III.4.1. fejezet tartalmazza, melyek alapján egy részletes eljárásrend összeállítható. A személyzetre vonatkozó feltétel biztosítása a laboratórium vezetőségének a feladata.

Az 5.4.4. pont szerint nem szabványos módszerek alkalmazása esetén megállapodást kell kötni a vevői igények meghatározása alapján, valamint a módszert a használat előtt

validálni kell. Az általam javasolt referencia eljárás az intézetünkben rendelkezésünkre álló hitelesített radonforrás, mint referencia etalon mérésén keresztül validálható. A vevői igényekről szóló megállapodásra vonatkozó követelmény a módszerfejlesztés jelen fázisában nem releváns.

Az 5.4.5. és 5.7.6. pontokban foglalt követelmények szintén a módszer validálására, valamint a mérési bizonytalanságra vonatkoznak. Az ezzel kapcsolatos információkat a III.2. és III.4.3. fejezetek tartalmazzák. A vevői igényeknek való megfelelés igazolására a későbbiekben kerülhet sor.

#### ***III.4.4.3. Berendezések***

Az 5.5.2. pont előírja, hogy az alkalmazott berendezésekkel a szükséges mérési pontosságot biztosítani kell, valamint azokat az üzembe helyezés előtt kalibrálni kell. A mérési bizonytalanságra és a kimutatási határra vonatkozó számításokat a III.4.3. fejezet tartalmazza. A laboratóriumban alkalmazott berendezések kalibrációja megoldott.

Az 5.5.3. pont előírja, hogy a berendezéseket megfelelően képzett személyzet használhatja, valamint hogy a berendezések használatára vonatkozó instrukciókat a személyzet rendelkezésére kell bocsátani. A személyi feltételek biztosítása a laboratórium vezetőségének a feladata. A kalibrációs kamra használatára vonatkozó instrukciók a III.4.1. fejezetben megtalálhatók. Az egyes műszerek (Pylon AB-5, Sarad EQF 3220 stb.) kezelési utasítása az intézetben rendelkezésre áll.

#### ***III.4.4.4. Mérések visszavezethetősége***

A 5.6.2.1. fejezet a kalibrációra vonatkozó specifikus követelményeket tartalmazza. Az 5.6.2.1.1. pont előírja, hogy biztosítani kell a mérések SI egységekre való visszavezethetőségét nemzeti etalonokon keresztül, melyek lehetnek elsődleges vagy másodlagos standardok. A III.2. fejezetben bemutatott referencia eljárás választásánál fontos szempont volt egy olyan módszer alkalmazása, amely kielégíti ezt a követelményt. Az általam választott szcintillációs számláló az intézetünkben rendelkezésünkre álló hitelesített radonforrás, mint referencia etalon mérésén keresztül validálható, így a módszer visszavezethetősége biztosított.

Az 5.6.3.2. pont a kalibrációnál használt referencia anyagokra vonatkozik. A követelmény előírja, hogy a referencia anyagok is legyenek visszavezethetők SI egységre, vagy egyéb hitelesítés szükséges. Ez a toronforrás esetében releváns, hiszen a forrásnak, mint referencia anyagnak, ki kell elégítenie ezt a követelményt. Esetünkben nem is maga a toronforrás tekinthető referencia anyagnak, hanem a forrás által a kalibráló kamrában kialakított toron atmoszféra, melynek mérése a III.2. fejezetben bemutatott módon történik, SI egységre visszavezethető módon.

A fentiek alapján elmondható, hogy az általam kifejlesztett kalibrációs módszer kielégíti az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 releváns követelményeit. Az egyes specifikus követelmények, mint például a vevői igényeknek való megfelelésre, műszerek és referencia anyagok időszakos ellenőrzésére, bizonyos eljárásrendek kidolgozására, eredmények közlésére vonatkozó előírások igazolása a módszer véglegesítése után, annak gyakorlati, rutinszerű laboratóriumi alkalmazását megelőzően lehetséges.

## IV. ÖSSZEFOGLALÁS

Jelen munka célja a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében korábban felállított toronkalibráló kamra továbbfejlesztése volt, mivel az előzetes kísérletek ennek szükségességét igazolták. Célként tűztem ki továbbá – amennyiben a kamrafejlesztés sikeresen megvalósul – egy protokollszerű kalibrációs módszer kidolgozását, amely elengedhetetlen a pontos, reprodukálható kalibrációs mérésekhez.

A kamrafejlesztés első lépéseként a kamra hőmérséklet-, páratartalom-, valamint aeroszolkoncentráció és részecske-méreteloszlás szabályozását, valamint ezek monitorozásának lehetőségét valósítottam meg. A kialakított páratartalom-szabályozó rendszerrel a nedvességtartalom 10 – 90 % között szabályozható. Vizsgáltam a páratartalom ezen tartományban történő változtatásának hatását a toronkoncentrációra különböző forrástípusok esetén. Ezenkívül megoldottam a kamra szigetelését, valamint vizsgáltam a toronkoncentráció térbeli homogenitását, mely alapján megállapítottam, hogy a kamrában a 30-50 cm-es tartományban stabil, homogén toronkoncentráció alakul ki.

Ezt követően megvizsgáltam a lehetséges referencia eljárásokat. A kísérletek alapján erre a célra a Lucas-cellás mintavételt követő Pylon AB-5 műszerrel történő mérést javasoltam (TCM módszer alapján).

Ezután vizsgálatokat végeztem a toronforrás fejlesztésére vonatkozóan. Megvizsgáltam a kerámia- és a gázharisnya-alapú forrásokat, valamint a „radonmentes” (kis Ra-226 tartalmú) toronforrás készítésének lehetőségeit. Az előzetesen elvégzett modellszámítások alapján az aktínium és tórium szeparációs eljárásokat teszteltem a gyakorlatban. Ezekkel jelenleg nem sikerült megfelelő aktivitású referencia anyagot előállítani, de igazoltam, hogy megfelelő módosításokkal a  $\text{FeCl}_3$ -os csapadékképzésen alapuló aktínium elválasztás alkalmassá tehető toronforrás készítésére.

Végül javaslatot tettem egy alkalmazható toron kalibrációs protokollra. A protokoll alapján kalibrációs tesztméréseket végeztem, melyek alapján megállapítottam, hogy az általam kidolgozott protokoll jól alkalmazható a gyakorlatban, valamint megfelel az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány követelményeinek. Meghatároztam továbbá a módszer döntési küszöb és kimutatási határ értékeit radon- és toronmérésre az MSZ EN ISO 16641:2016 szabvány alapján, valamint a kimutatási határ aktivitáskoncentráció függését. A vizsgálatok alapján egy egyszerű empirikus összefüggést ajánlottam a kimutatási határok becslésére a várható koncentrációszintek ismeretében. Fontos



jövőbeli feladat a toronforrás radonmentesítésének gyakorlati megvalósítása. A sikeres forráskészítést követően aztán, tetszőlegesen beállított kevert radon/toron atmoszférában kalibrációs mérések végezhetők, és ezek alapján az egyes detektortípusok szelektivitása vizsgálható. Ezek után a kalibrációs protokoll kiegészíthető kevert atmoszférájú környezetben történő mérésekkel is.

Az előzetes vizsgálatok alapján az RRI kamra a jövőben alkalmassá tehető a radon/toron leányelem-monitorok kalibrálására is. Ehhez jó kiindulási alapot jelenthet az itt bemutatott aeroszol koncentráció és részecskeméret-eloszlás szabályozó rendszer, amely a leányelem kalibrálás egyik fontos feltétele.

A kalibráló kamra megfelelő működésének ellenőrzése nagyszámú statisztikai vizsgálat elvégzésével lehetséges. Ez különböző típusú monitorok kalibrálásán keresztül valósítható meg, amely egy fontos jövőbeli feladat.

A sikeres kalibrációt követően szintén jelentős jövőbeli feladat lesz a monitorok gyakorlati alkalmazhatóságának tesztelése. Ezt főként olyan helyeken célszerű elvégezni, ahol a korábbiakban már történtek radon/toron meghatározására vonatkozó felmérések (pl Ajka, Kővágószőlős, Tatbánya, Japán, Szlovénia stb.), így a kapott adatok összevethetőek lesznek a korábbi eredményekkel, ezáltal meggyőződhetünk azok hitelességéről. Fontos azonban, hogy a gyakorlati tesztelés során aktív mérőműszereket is alkalmazzunk a még pontosabb összehasonlítás végett.

## IRODALOMJEGYZÉK

- [1] A. Sorimachi, H. Takahashi, S. Tokonami S: Influence of the presence of humidity, ambient aerosols and thoron on the detection responses of electret radon monitors. *Radiation Measurements* 44, 111-115, 2009.
- [2] E. Gargioni, A. Honig, A. Röttger: Development of a calibration facility for measurements of the thoron activity concentration. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment* 506, 166-172, 2003.
- [3] A. Sorimachi, T. Ishikawa, M. Janik, S. Tokonami: Quality assurance and quality control for thoron measurements at NIRS. *Radiation Protection Dosimetry* 141(4), 367-370, 2010.
- [4] A. Röttger, A. Honig, R. Dersch, O. Ott, A. Arnold: A primary standard for activity concentration of  $^{220}\text{Rn}$  (thoron) in air. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 1292–1296, 2010.
- [5] MSZ EN ISO 16641:2016: A környezeti radioaktivitás mérése. Levegő. Radon-220: Az átlagos aktivitáskoncentráció meghatározása integrált mérési módszerekkel, passzív szilárdtest-nyomdetektorokkal (ISO 16641:2014)
- [6] M. Eisenbud, T. Gesell: *Environmental Radioactivity from Natural, Industrial, and Military Sources*. Academic Press, 1997.
- [7] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 2008 Report to the General Assembly, with scientific annexes. United Nations, New York, 2010.
- [8] Somlai J., Tarján S., Kanyár B. : *Radioaktív sugárzások és környezetünk*. Energia Klub Környezetvédelmi Egyesület, Budapest, 2000.
- [9] Kanyár B., Somlai J., Szabó D. L.: *Környezeti sugárzások, Radioökológia*. Veszprémi Egyetem, Radiokémia Tanszék, Veszprém, 1996.
- [10] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with scientific annexes. United Nations, New York, 1993.
- [11] F. Spurny: Radiation doses at high altitudes and during space flights, 8th International Symposium on Radiation Physics – ISRP8. *Radiation Physics and Chemistry* 61, 301-307, 2001.

- [12] <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html> (letöltés ideje: 2016.10.06)
- [13] I. Nikl: The radon concentration and absorbed dose rate in Hungarian dwellings. *Radiation Protection Dosimetry* 67(3), 225-228, 1996.
- [14] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 2006 Report to the General Assembly, with scientific annexes. United Nations, New York, 2009.
- [15] H. Breuer: SH Atlasz Kémia. Springer-Hungarica, Budapest, 1995.
- [16] International Commission on Radiological Protection: Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Supplement to Part 1, Ann. ICRP 3(1-4), Pergamon Press, Oxford 1979.
- [17] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes. United Nations, New York, 2000.
- [18] E. Nussbaum: Radon solubility in body tissues and in fatty acids. In *Research and Development Report*, University of Rochester, Rochester, New York, 1957.
- [19] A. Cavallo: The radon equilibrium factor and comparative dosimetry in homes and mines. *Radiation Protection Dosimetry* 92, 295-295, 2000.
- [20] G. S. Islma, S. C. Mazumdar, M. A. Ashraf: Influence of various room parameters upon radon daughter equilibrium indoors. *Radiation Measurements* 26, 193-201, 1996.
- [21] B. G. Madas, I. Balásházy: Mutation induction by inhaled radon progeny modeled at the tissue level. *Radiation and Environmental Biophysics* 50(4), 553-570, 2011.
- [22] S. Darby, D. Hill, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios, H. Baysson, F. Bochicchio, H. Deo, R. Falk, F. Forastiere, M. Hakama, I. Heid, L. Kreienbrock, M. Kreuzer, F. Lagarde, I. Mäkeläinen, C. Muirhead, W. Oberaigner, G. Pershagen, A. Ruano-Ravina, E. Ruosteenoja, A. S. Rosario, M. Tirmarche, L. Tomásek, E. Whitley, H. E. Wichmann, R. Doll R: Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. *British Medical Journal* 330(7485), 223-226, 2005.

- [23] F. Bochicchio: The radon issue: Considerations on regulatory approaches and exposure evaluations on the basis of recent epidemiological results. *Applied Radiation and Isotopes* 66(11), 1561-1566, 2008.
- [24] J. Chen: Estimated risks of radon-induced lung cancer for different exposure profiles based on new EPA model. *Health Physics* 88(4), 323-333, 2005.
- [25] D. Nikezic, V. M. Markovic, D. Krstic, P. K. N. Yu: Doses in human organs due to alpha, beta and gamma radiations emitted by thoron progeny in the lung. *Radiation Protection Dosimetry* 141(4/SI), 428-431, 2010.
- [26] O. Meisenberg, J. Tschiersch: Thoron in indoor air: modeling for a better exposure estimate. *Indoor Air* 21(3), 240-252, 2011.
- [27] H. Sun, D. J. Furbish: Moisture content effect on radon emanation in porous media. *Journal of Contaminant Hydrology* 18, 239-255, 1995.
- [28] M. Y. Menetrez, R. B. Mosley: Evaluation of radon emanation from soil with varying moisture content in a soil chamber. *Environment International* 22(1), 447-453, 1996.
- [29] Jobbágy V.: NORM anyagok radionuklid koncentrációját és emanációját befolyásoló paraméterek vizsgálata építőipari felhasználhatóság szempontjából. Doktori (PhD) értekezés, Pannon Egyetem, Veszprém, 2007.
- [30] J. Porstendörfer: Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *Journal of Aerosol Science* 25(2), 219-263, 1994.
- [31] T. Sasaki, Y. Gunji, T. Okuda: Mathematical Modeling of Radon Emanation. *Journal of Nuclear Science and Technology* 41(2), 142-151, 2004.
- [32] Z. Sas, J. Somlai, G. Szeiler, T. Kovács: Radon emanation and exhalation characteristic of heat-treated clay samples. *Radiation Protection Dosimetry* 152(1-3), 51-54, 2012.
- [33] I. López-Coto, J. L. Mas, J. P. Bolivar, R. García-Tenorio: A short-time method to measure the radon potential of porous materials. *Applied Radiation and Isotopes* 67, 133-138, 2009.
- [34] E. Strandén, A. K. Kolstad, B. Lind: The influence of moisture and temperature on radon exhalation. *Radiation Protection Dosimetry* 7, 55-58, 1984.

- [35] G. Keller, B. Hoffmann, T. Feigenspan: Radon permeability and radon exhalation of building materials. *Science of The Total Environment* 272(1–3), 85-89,2001.
- [36] J. Somlai V. Jobbágy, K. Somlai, J. Kovács, Cs. Németh, T. Kovács: Connection between radon emanation and some structural properties of coal-slag as building material. *Radiation Measurements* 43, 73-76, 2008.
- [37] K. Megumi, T. Mamuro: Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles. *Journal of Geophysical Research* 79, 3357-3360, 1974.
- [38] J. G. Ingersoll: A survey of radionuclide contents and radon emanation rates in building materials used in the U. S. *Health Physics* 45, 363-368, 1983.
- [39] Nabil M. Hassan, T. Ishikawa, M. Hosoda, K. Iwaoka, A. Sorimachi, S. K. Sahoo, J. Miroslaw, K. Chutima, H. Yonehara, M. Fukushi, S. Tokonami: The effect of water content on the radon emanation coefficient for some building materials used in Japan. *Radiation Measurements* 46, 232-237, 2011.
- [40] M. Hosoda, M. Shimo, M. Sugino, M. Furukawa, M. Fukushi: Effect of soil moisture content on radon and thoron exhalation. *Journal of Nuclear Science and Technology* 44(4), 664-672, 2007.
- [41] I. Cozmuta, E. R. Van der Graaf, R. J. De Meijer: Moisture Dependence of Radon Transport in Concrete, *Measurements and Modeling. Health Physics* 85(4), 438-456. 2003.
- [42] J. Vaupotic, A. Gregoric, I. Kobal, P. Zvab, K. Kozak, J. Mazur, E. Kochowska, D. Grzadziel: Radon concentration in soil gas and radon exhalation rate at the Ravne Fault in NW Slovenia. *Natural Hazards and Earth System Sciences* 10(4), 895-899, 2010.
- [43] P. Bossew, G. Dubois, T. Tollefsen: Investigations on indoor Radon in Austria, part 2: Geological classes as categorical external drift for spatial modelling of the Radon potential. *Journal of Environmental Radioactivity* 99(1), 81-97, 2008.
- [44] J. Somlai, Z. Gorjánác, A. Várhegyi, T. Kovács: Radon concentration in houses over a closed Hungarian uranium mine. *Science of the Total Environment* 367(2-3), 653-665, 2006.

- [45] J. E. Rowe, M. Kelly, L. E. Price: Weather system scale variation in radon-222 concentration of indoor air. *The Science of the Total Environment* 284(1-2), 157-166, 2002.
- [46] C. Kozłowska, A. Walencik, J. Dorda, W. Zipper: Radon in groundwater and dose estimation for inhabitants in Spas of the Sudety Mountain area, Poland. *Applied Radiation and Isotopes* 68(4-5), 854-857, 2010.
- [47] M. S. Al-Masri, R. Shwiekani: Radon gas distribution in natural gas processing facilities and workplace air environment. *Journal of Environmental Radioactivity* 99(4), 574-580, 2008.
- [48] World Health Organization: *Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective*. 2009.
- [49] F. J. Maringer, M. G. Akis, H. Kaineder, P. Kindl, C. Kralik, H. Lettner, S. Lueglinger, E. Nadschläger, W. Ringer, R. Rolle, F. Schönhofer, S. Sperker, H. Stadtmann, F. Steger, F. Steinhäusler, M. Tschurlovits, R. Winkler: Results and conclusions of the Austrian radon mitigation project 'SARAH'. *Science of The Total Environment* 272(1-3), 159-167, 2001.
- [50] A. Fronka, L. Moucka: Blower door method and measurement technology in radon diagnosis. *International Congress Series* 1276, 377-378, 2005.
- [51] M. Jiráneka, K. Rovenskáb: Limited applicability of cost-effectiveness and cost-benefit analyses for the optimization of radon remedial measures. *Journal of Hazardous Materials* 182(1-3), 439-446, 2010.
- [52] T. Katona, B. Kanyár, J. Somlai: Cost assessment of ventilation and averted dose due to radon in dwellings. *Journal of Environmental Radioactivity* 79(2), 223-230, 2005.
- [53] V. Urosevic, D. Nikezic, S. Vulovic: A theoretical approach to indoor radon and thoron distribution. *Journal of Environmental Radioactivity* 99(12), 1829-1833, 2008.
- [54] N. Harley, P. Chittaporn, R. Medora, R. Merrill: Measurement of the indoor and outdoor <sup>220</sup>Rn (thoron) equilibrium factor: application to lung dose. *Radiation Protection Dosimetry* 141(4), 357-362, 2010.
- [55] International Atomic Energy Agency: *Control of exposure to thoron. Safety Reports Series No. 33, Radiation protection against radon in workplaces other than mines, Annex I, 41-44, Vienna, 2003.*

- [56] IAEA Safety Series No. 115: International Basic Safety Standards for Protection Against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources. Vienna, 1996.
- [57] European Communities: Council Directive 96/29/EURATOM of 13 May 1996 laying down basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiation. Official Journal of the European Communities, 1996.
- [58] IAEA Safety Standards Series No. GSR Part 3: Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, General Safety Requirements. International Atomic Energy Agency, Vienna, 2014.
- [59] 487/2015. (XII. 30.) Korm. rendelet az ionizáló sugárzás elleni védelemről és a kapcsolódó engedélyezési, jelentési és ellenőrzési rendszerről.
- [60] ICRP Publication 103: Recommendations of the International Commission on Radiological Protection (Users Edition). Ann. ICRP 37 (2-4), 2007.
- [61] U. S. Environmental Protection Agency (EPA) 402-K92-001: Air Radiation (ANR-464), A citizen's guide to radon. 1993.
- [62] ICRP Publication 65: Protection Against Radon-222 at Home and at Work. Ann. ICRP 23(2), 1993.
- [63] E. J. Bradley: Programme to identify homes with high radon levels and to encourage radon remediation in homes in Flintshire. Health Protection Agency, HPA-RPD-037, 2008.
- [64] C. E. Andersen, K. Ulbak, A. Damkjær, P. Kirkegaard, P. Gravesen: Mapping indoor radon-222 in Denmark: design and test of the statistical model used in the second nationwide survey. The Science of the Total Environment 272, 231-241, 2001.
- [65] G. Espinosa, J. I. Golzarri, A. Angeles, R. V. Griffith: Nationwide survey of radon levels in indoor workplaces in Mexico using Nuclear Track Methodology. Radiation Measurements 44, 1051-1054, 2009.
- [66] C. Diyun, Y. Xingbao, H. Ruiying: Indoor radon survey in indoor environments in Zhuhai city, China. Radiation Measurements 39, 205-207, 2005.
- [67] M. H. Magalhaes, E. C. S. Amaral, I. Sachett, E. R. R. Rochedo: Radon-222 in Brazil: an outline of indoor and outdoor measurements. Journal of Environmental Radioactivity 67, 131-143, 2003.

- [68] H. Friedmann, P. Zimprich, C. Atzmüller, W. Hofmann H. Lettner, F. Steinhausler: Austrian Radon Project. *Environment International* 22, 677-686, 1996.
- [69] R. Trevisi, F. Leonardi, C. Simeoni, S. Tonnarini, M. Veschetti: Indoor radon levels in schools of South-East Italy. *Journal of Environmental Radioactivity* 112, 160-164, 2012.
- [70] H. S. Virk, N. Sharma: Indoor radon/thoron survey report from Hamirpur and Una districts, Himachal Pradesh, India. *Applied Radiation and Isotopes* 52, 137-141, 2000.
- [71] R. C. Ramola, M. S. Negi, V. M. Choubey: Radon and thoron monitoring in the environment of Kumaun Himalayas: survey and outcomes. *Journal of Environmental Radioactivity* 79, 85-92, 2005.
- [72] N. Sulekha Rao, D. Sengupta: Seasonal levels of radon and thoron in the dwellings along southern coastal Orissa, Eastern India. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 28-32, 2010.
- [73] M. Wei, W. Zhuo, Y. Luo, M. Furukawa, X. Chen, Y. Yamada, D. Lin, F. Jian: Radon and thoron in Yongding Hakka Earth Building in Fujian Province of China. *International Congress Series* 1276, 309-310, 2005.
- [74] Z. Guizhi, X. Detao, X. Yongjun: Survey of radon and thoron concentrations in two types of countryside dwellings. *Radiation Measurements* 43, 479-481, 2008.
- [75] Y. J. Kim, H. Y. Lee, C. S. Kim, B. U. Chang, B. H. Rho, C. K. Kim, S. Tokonami: Indoor radon, thoron, and thoron daughter concentrations in Korea. *International Congress Series* 1276, 46-49, 2005.
- [76] Cs. Németh, S. Tokonami, T. Ishikawa, H. Takahashi, W. Zhuo, M. Shimo: Measurements of radon, thoron and their progeny in a dwelling in Gifu prefecture, Japan. *International Congress Series* 1276, 283-284, 2005.
- [77] L. Mjönes, R. Falk, H. Mellander, L. Nyblom:  $^{220}\text{Rn}$  and its progeny in buildings in Sweden. *Environment International* 22, 1125-1133, 1996.
- [78] Z. Stojanovska, P. Bossew, S. Tokonami, Z. S. Zunic, F. Boichichio, B. Boev, M. Ristova, J. Januseski : National survey of indoor thoron concentration in FYR of Macedonia (continental Europe Balkan region). *Radiation Measurements* 49, 57-66, 2013.



- [79] T. Kovács: Thoron measurements in Hungary. *Radiation Protection Dosimetry* 141, 328-334, 2010.
- [80] N. Kávási, Cs. Németh, T. Kovács, S. Tokonami, V. Jobbágy, A. Várhegyi, Z. Gorjánác, T. Vígh, J. Somlai: Radon and thoron parallel measurements in Hungary. *Radiation Protection Dosimetry* 123, 250-253, 2007.
- [81] G. Szeiler, J. Somlai, T. Ishikawa, Y. Omori, R. Mishra, B. K. Sapra, Y. S. Mayya, S. Tokonami, A. Csordás, T. Kovács: Preliminary results from an indoor radon thoron survey in Hungary. *Radiation Protection Dosimetry* 152, 243-246, 2012.
- [82] J. C. Hadlera, R. S. Nemana, P. J. Iunesa, O. L. S. Pereiraa, S. R. Paulob: Indoor radon and radon progeny survey at Campinas – Brazil using CR-39: Final results. *Radiation Measurements* 43, S440-S444, 2008.
- [83] G. Qiuqia, C. Boa, S. Quanfub: A pilot survey on indoor radon and thoron progeny in Yangjiang, China. *International Congress Series* 1276, 313-314, 2005.
- [84] F. Bochicchio, G. Campos Venuti, C. Nuccetelli, S. Risica, F. Tancredi: Indoor measurements of  $^{220}\text{Rn}$  and  $^{222}\text{Rn}$  and their decay products in a mediterranean climate area. *Environment International* 22, 633-639, 1996.
- [85] W. H. Chung, S. Tokonami, M. Furukawa: Preliminary survey on radon and thoron concentrations in Korea. *Radiation Protection Dosimetry* 80(4), 423-426, 1998.
- [86] Q. J. Guo, J. P. Cheng, B. Shang, J. Y. Shun: The levels of indoor thoron and its progeny in four areas in China. *Journal of Nuclear Science and Technology* 38(9), 799-803, 2001.
- [87] R. Mishra, S. P. Tripathy, D. T. Khathing, K. K. Dwivedi: An extensive indoor  $\text{Rn-222/Rn-220}$  monitoring in Shillong, India. *Radiation Protection Dosimetry* 112(3), 429-433, 2004.
- [88] S. Tokonami, Q. F. Sun, S. Akiba, W. H. Zhuo, M. Furukawa, T. Ishikawa, C. S. Hou, S. Z. Zhang, Y. Narazaki, B. Ohji, H. Yonehara, Y. Yamada: Radon and thoron exposures for cave residents in Shanxi and Shaanxi Provinces. *Radiation Research* 162(4), 390-396, 2004.
- [89] T. Martinez, M. Navarrete, P. Gonzalez, A. Ramirez: Variation in indoor thoron levels in Mexico City dwellings. *Radiation Protection Dosimetry* 111(1/SI), 111-113, 2004.

- [90] J. Vaupotic, I. Celikovic, N. Smrekar, Zs. Zunic, I. Kobal: Concentrations of Rn-222 and Rn-220 in indoor air. *Acta Chimica Slovenica* 55(1), 160-165, 2008.
- [91] B. Shang, J. Tschiersch, H. X. Chui, Y. Xia: Radon survey in dwellings of Gansu, China: the influence of thoron and an attempt for correction. *Radiation and Environmental Biophysics* 47(3), 367-373, 2008.
- [92] J. Chen, E. Schroth, E. MacKinlay, I. Fife, A. Sorimachi, S. Tokonami: Simultaneous <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn measurements in Winnipeg, Canada. *Radiation Protection Dosimetry* 134(2), 75-78, 2009.
- [93] Cs. Németh, V. Jobbágy, N. Kávási, J. Somlai, T. Kovács, S. Tokonami: Radon and thoron parallel measurements in dwellings nearby a closed Hungarian uranium mine. *Nukleonika* 55(4), 459-462, 2010.
- [94] C. Sainz, L. S. Quindos, I. Fuente, J. Nicolás, L. Quindós: Analysis of the main factors affecting the evaluation of the radon dose in workplaces: The case of tourist caves. *Journal of Hazardous Materials* 145(3), 368-371, 2007.
- [95] P. Kotrappa: Long term stability of electrets used in electret ion chambers. *Journal of Electrostatics* 66, 407-409, 2008.
- [96] Bódizs D.: *Atommagsugárzások mérés technikái*. Typotex Kiadó, Budapest, 2006.
- [97] R. Fairchild, L. Tjong, T. Wright: Automating radon solid state track detector measurements. *Radiation Measurements* 46, 1773-1777, 2011.
- [98] Németh Z. : *Radiokémiai és izotóptechnikai alapismertek*. Veszprémi Egyetemi Kiadó, Veszprém, 1996.
- [99] W. H. Zhuo, S. Tokonami, H. Yonehara, Y. Yamada: A simple passive monitor for integrating measurements of indoor thoron concentrations. *Review of Scientific Instruments* 73(8), 2877-2881, 2002.
- [100] R. Mishra, Y. S. Mayya: Study of a deposition-based direct thoron progeny sensor (DTPS) technique for estimating equilibrium equivalent thoron concentration (EETC) in indoor environment. *Radiation Measurement* 43, 1408-1416, 2008.
- [101] M. Doi, S. Kobayashi, K. Fujimoto: A passive measurement technique for characterization of high-risk house in Japan due to enhanced levels of indoor radon and thoron concentrations. *Radiation Protection Dosimetry* 45(1-4/S), 425-430, 1992.

- [102] P. Kotrappa: E-PERM System Manual – Part II 11 – Modified E-PERM for passive measurements of thoron in air. Rad Elec Inc., Frederick, MD, 1996.
- [103] R. Falk, H. More, L. Nyblom: Measurements of Rn-220 in air using a flow-through Lucas cell and multiple time analysis of recorded pulse events. *Radiation protection Dosimetry* 45(1-4/S), 111-113, 1992.
- [104] T. Iimoto, R. Kurosawa: A pulse-coincidence Rn-220 monitor with three time-gates. *Environment International* 22(1), S1139-S1145, 1996.
- [105] P. Zettwoog: State of the art of the alpha dosimetry in France. *Radiation Hazards in Mining: Control Measurements and Medical Aspects (Proc. Int. Conf. Golden, CO, 1981)*, Society for Mining, Metallurgy and Exploration, Littleton, CO, 321-331, 1981.
- [106] S. Tokonami, M. L. Yang, T. Sanada: Contribution from thoron on the response of passive radon detectors. *Health Physics* 80(6), 612-615, 2001.
- [107] M. Calamosca, S. Penzo: A new CR-39 nuclear track passive thoron measuring device. *Radiation Measurements* 44, 1013-1018, 2009.
- [108] B. Machaj, P. Urbanski, J. Bartak: Measurement of radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) and thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) concentration with a single scintillation cell. *Nukleonika* 52(4), 167-171, 2007.
- [109] K. P. Eappen, B. K. Sapra, Y. S. Mayya: A novel methodology for online measurement of thoron using Lucas scintillation cell. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment* 572, 922-925; 2007.
- [110] K. P. Eappen, R. N. Nair, Y. S. Mayya: Simultaneous measurement of radon and thoron using Lucas scintillation cell. *Radiation Measurements* 43, 91-97, 2008.
- [111] L. Zhang, J. Wu, Q. Guo, W. Zhuo: Measurement of thoron gas in the environment using a Lucas scintillation cell. *Journal of Radiological Protection* 30, 597-605, 2010.
- [112] P. Tuccimei, M. Moronic, D. Norcia: Simultaneous determination of  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{220}\text{Rn}$  exhalation rates from building materials used in Central Italy with accumulation chambers and a continuous solid state alpha detector: Influence of particle size, humidity and precursors concentration. *Applied Radiation and Isotopes* 64, 254-263, 2006.

- [113] N. P. Petropoulos, M. J. Anagnostakis, S. E. Simopoulos: Building materials radon exhalation rate: ERRICCA intercomparison exercise results. *The Science of the Total Environment* 272, 109-118, 2001.
- [114] A. Sorimachi, S. Kumar Sahoo, S. Tokonami: Generation and control of thoron emanated from lantern mantles. *Review of Scientific Instruments* 80, 015104, 2009.
- [115] A. Röttger, A. Honig, D. Arnold: The German thoron progeny chamber – Concept and application. *Applied Radiation and Isotopes* 67, 839-842, 2009.
- [116] Sas Z.: Építőanyagok radonemanációját és exhalációját befolyásoló paraméterek meghatározása. Doktori (PhD) értekezés, Pannon Egyetem, Veszprém, 2012.
- [117] S. Brunauer, P. H. Emmett. E. Teller: Adsorption of Gases in Multimolecular Layer. *Journal of the American Chemical Society* 60(2), 309-319, 1938.
- [118] T. Kovács, N. Kávási, Cs. Németh, J. Somlai, T. Vigh, G. Szeiler, S. Tokonami, H. Takahashi: Radon and Thoron Measurements at Special Underground Circumstances. *Proceedings CD of IRPA12 - 12th International Congress of the International Radiation Protection Association, Buenos Aires, Argentina, 2008.*
- [119] V. Jobbágy, J. Somlai, J. Kovács, G. Szeiler, T. Kovács: Dependence of radon emanation of red mud bauxite processing wastes on heat treatment. *Journal of Hazardous Materials* 172, 1258-1263, 2009.
- [120] V. M. Sglavo, R. Campostrini, S. Maurina, G. Carturan, M. Monagheddu, G. Budroni, G. Cocco: Bauxite 'red mud' in the ceramic industry. Part 1: thermal behaviour. *Journal of the European Ceramic Society* 20, 235-244, 2000.
- [121] S. Nour, A. El-Sharkawy, W. C. Burnett, E. P. Horwitz: Radium-228 determination of natural waters via concentration on manganese dioxide and separation using Diphonix ion exchange resin. *Applied Radiation and Isotopes* 61, 1173-1178, 2004.
- [122] O. Alhassanieh, A. Abdul-Hadi, M. Ghafar, A. Aba: Separation of Th, U, Pa, Ra and Ac from natural uranium and thorium series. *Applied Radiation and Isotopes* 51, 493-498, 1999.

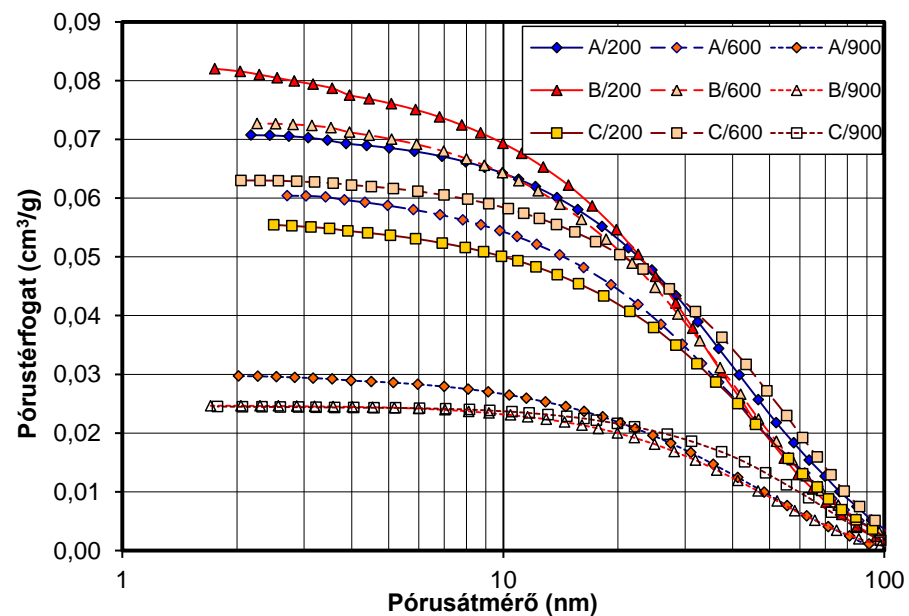
- [123] Z. Szegłowski, B. Kubica: Extraction of actinium with di(2-ethylhexyl)phosphoric acid from hydrochloric and nitric acid solutions. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 153(1), 67-74, 1991.
- [124] Manual RTM2200/EQF3220. SARAD GmbH, Dresden, 2010.
- [125] M. Raghavayya, M. A. R. Iyengar, P. M. Markose: Estimation of radium-226 by emanometry. *Bulletin of Radiation Protection* 3, 11-14, 1980.
- [126] Y. S. Mayya, D. C. Sahni: Studies on the diffusional and electrical transport of the daughter aerosols of radon and thoron in moving gases. Report BARC/1994/E/021, 1994.
- [127] N. Kávási, M. Janik, G. Prasad, Y. Omori, T. Ishikawa, H. Yonehara: Thoron experimental room at the National Institute of Radiological Sciences (NIRS), Japan. *Radiation Protection Dosimetry*, doi:10.1093/rpd/ncs212, 2012.
- [128] Bátor G.: Szkenner alapú nyomdetektor elemző rendszer kifejlesztése és összehasonlítása hagyományos optikai mikroszkópos módszerrel. Diplomadolgozat, Pannon Egyetem, Veszprém, 2015.
- [129] ISO/FIDS 11665-4:2011(E): Measurement of radioactivity in the environment – Air – Part 4: Radon-222 : Integrated measurement methods for the determination of the average radon activity concentration in the atmospheric environment using passive sampling and delayed analysis.
- [130] ISO 11929-7:2005(E): Determination of the detection limit and decision threshold for ionizing radiation measurements – Part 7: Fundamentals and general applications.
- [131] S. Tokonami, H. Takahashi, Y. Kobayashi, W. Zhuo, E. Hulber: Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey. *Review of Scientific Instruments* 76, 113505, 2005.
- [132] S. Chalupnik, O. Meisenberg, L. Bi, J. Wang, K. Skubacz, J. Tschiersch: Measurements of radon and thoron decay products in air. An application of LSC and TLD methods. *Raminian Journal of Physics* 58, S62-S72, 2013.
- [133] MSZ EN ISO/IEC 17025:2005: Vizsgáló- és kalibrálólaboratóriumok felkészültségének általános követelményei (ISO/IEC 17025:2005)
- [134] B. Sabot, S. Pierre, P. Cassette, N. Michielsen, S. Bondiguel: Development of a primary thoron activity standard for the calibration of thoron

- measurement instruments. *Radiation Protection Dosimetry* 167 (1-3), 70-74, 2015.
- [135] B. Sabot, S. Pierre, N. Michielsen, S. Bondiguel, P. Cassette: A new thoron atmosphere reference measurement system. *Applied Radiation and Isotopes* 109, 205-209, 2016.
- [136] <http://pylonelectronics-radon.com/radioactive-sources/> (letöltés ideje: 2017.03.20)
- [137] [http://www.teralab.co.uk/Experiments/Radon\\_220/Radon\\_220\\_Page1.htm](http://www.teralab.co.uk/Experiments/Radon_220/Radon_220_Page1.htm) (letöltés ideje: 2014.08.26)
- [138] [http://www.acamedia.info/sciences/J\\_G/references/bfs/cht\\_i\\_06.pdf](http://www.acamedia.info/sciences/J_G/references/bfs/cht_i_06.pdf) (letöltés ideje: 2013.09.09)
- [139] H. Bateman: Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations. *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* 423, 1910.
- [140] <http://www.chemistryexplained.com/elements/A-C/Actinium.html> (letöltés ideje: 2017.03.31)
- [141] <https://en.wikipedia.org/wiki/Actinium> (letöltés ideje: 2017.03.31)
- [142] <http://www.lenntech.com/periodic/elements/ac.htm> (letöltés ideje: 2017.03.31)
- [143] <http://www.chemistryexplained.com/elements/T-Z/Thorium.html> (letöltés ideje: 2017.03.31)
- [144] <http://www.lenntech.com/periodic/elements/th.htm> (letöltés ideje: 2017.03.31)
- [145] <https://en.wikipedia.org/wiki/Thorium> (letöltés ideje: 2017.03.31)
- [146] <https://nzic.org.nz/ChemProcesses/water/13D.pdf> (letöltés ideje: 2012.04.12)
- [147] <http://www.wqpmag.com/ion-exchange-resins-and-processes-industrial-water-treatment> (letöltés ideje: 2012.04.1.)
- [148] <http://www.dow.com/webapps/include/GetDoc.aspx?filepath=liquidseps/pdfs/noreg/177-01395.pdf> (letöltés ideje: 2012.04.12)
- [149] L. Hallstadius: A method for the electrodeposition of actinides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 223, 266-267, 1984.
- [150] American Cancer Society: *Global Cancer Fact & Figures 3rd Edition*. Atlanta, American Cancer Society, 2015.

- [151] G. B. Remmey: *Firin Ceramics*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 1994.
- [152] R. B. Heimann: *Classic and Advanced Ceramics*. WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2010.

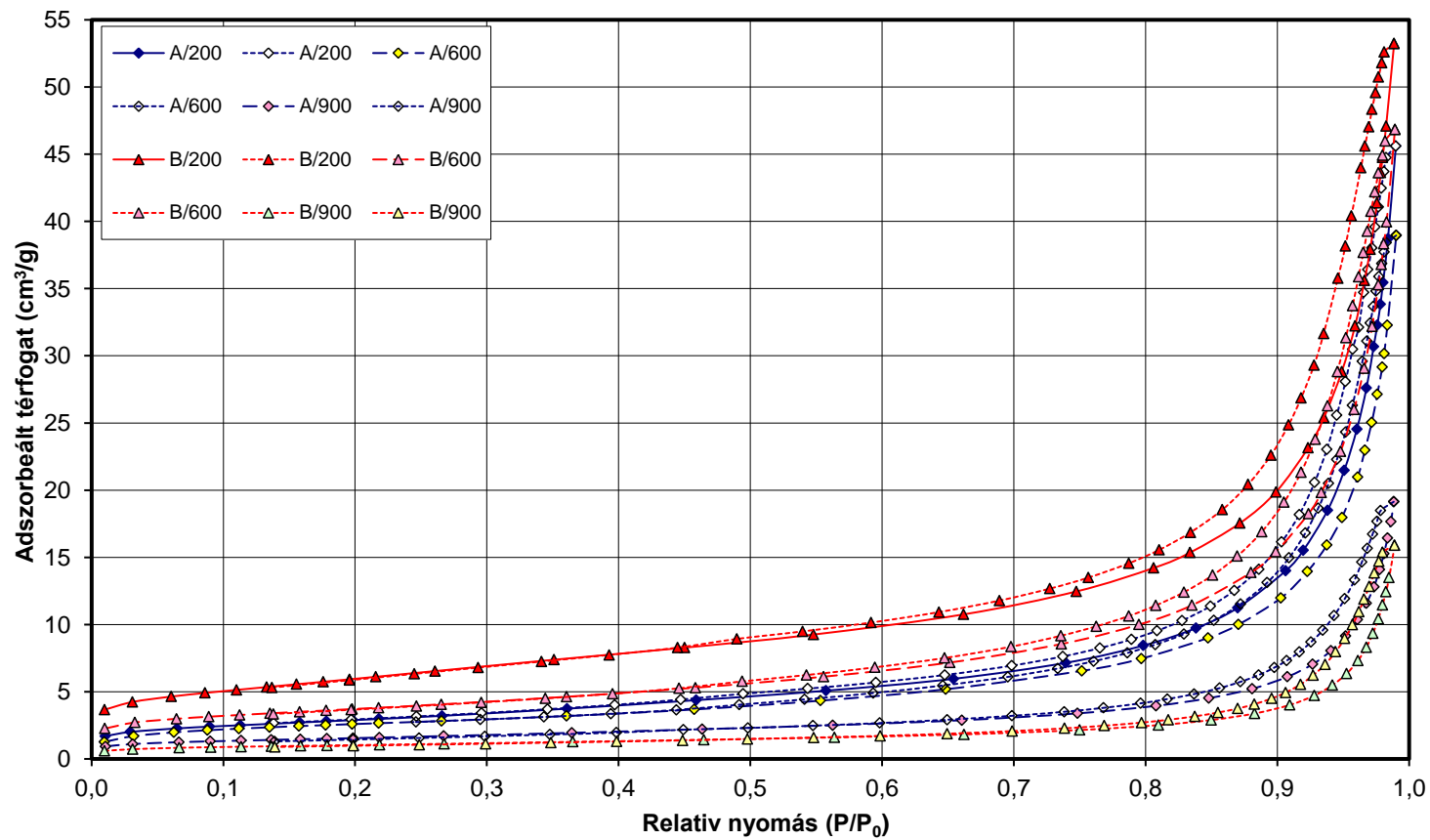
## FÜGGELÉK

### F.1. Anyagszerkezeti vizsgálatok

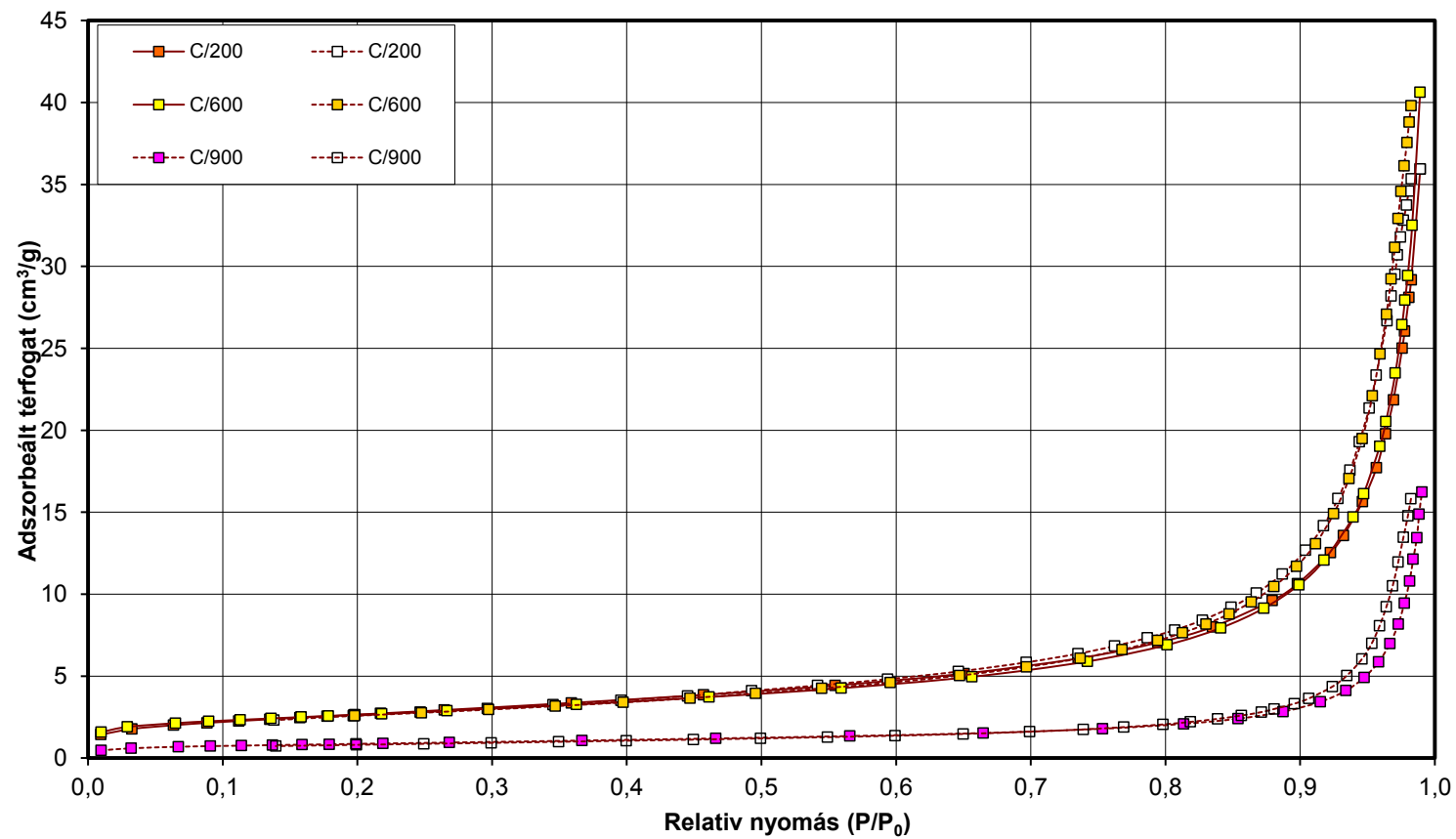


F.1-1. ábra: Pórusméret-eloszlás a nitrogénadszorpciós módszer eredményei alapján  
(jelmagyarázat: kerámiatípus/hőkezelés hőmérséklete [°C])

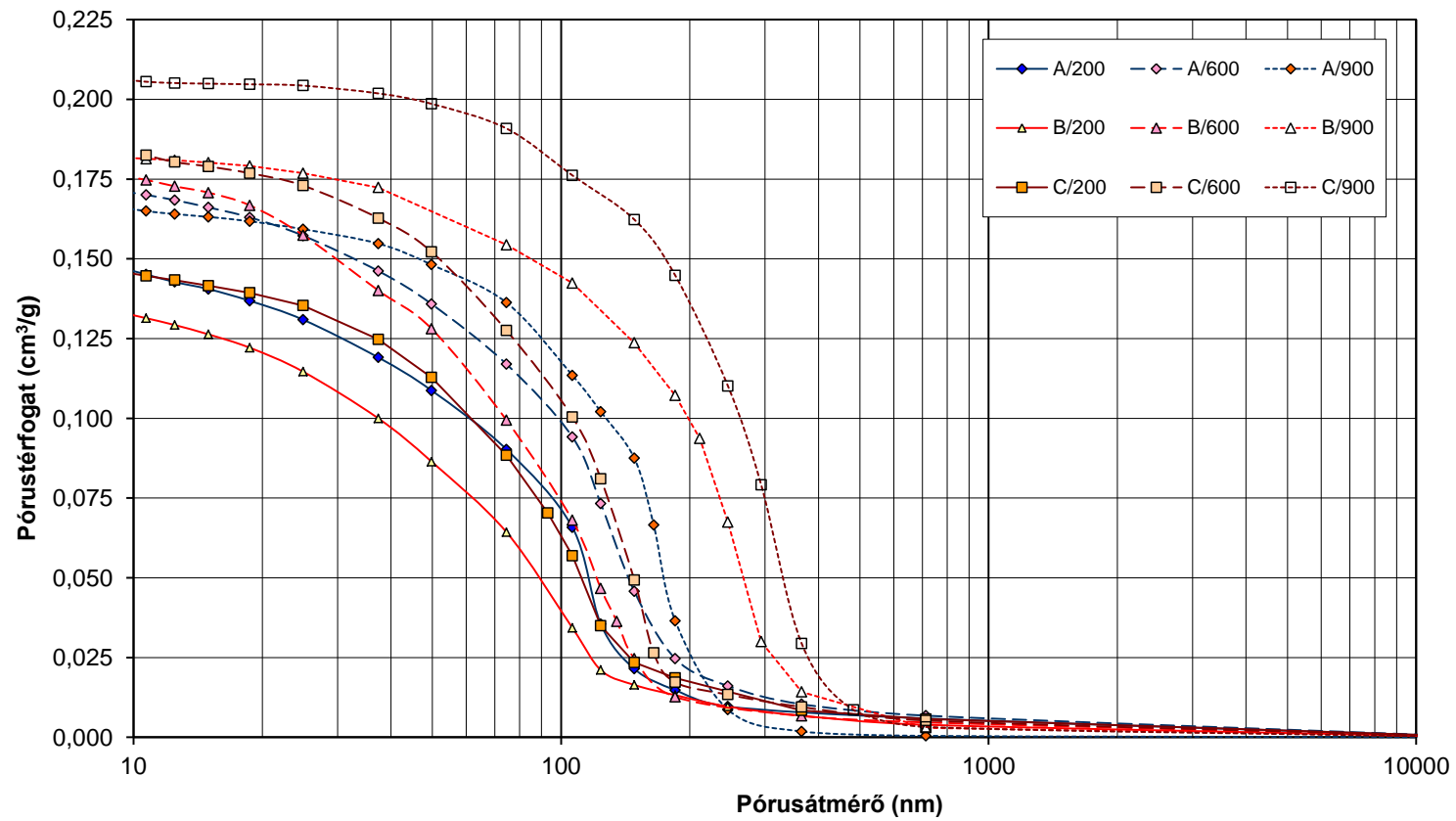




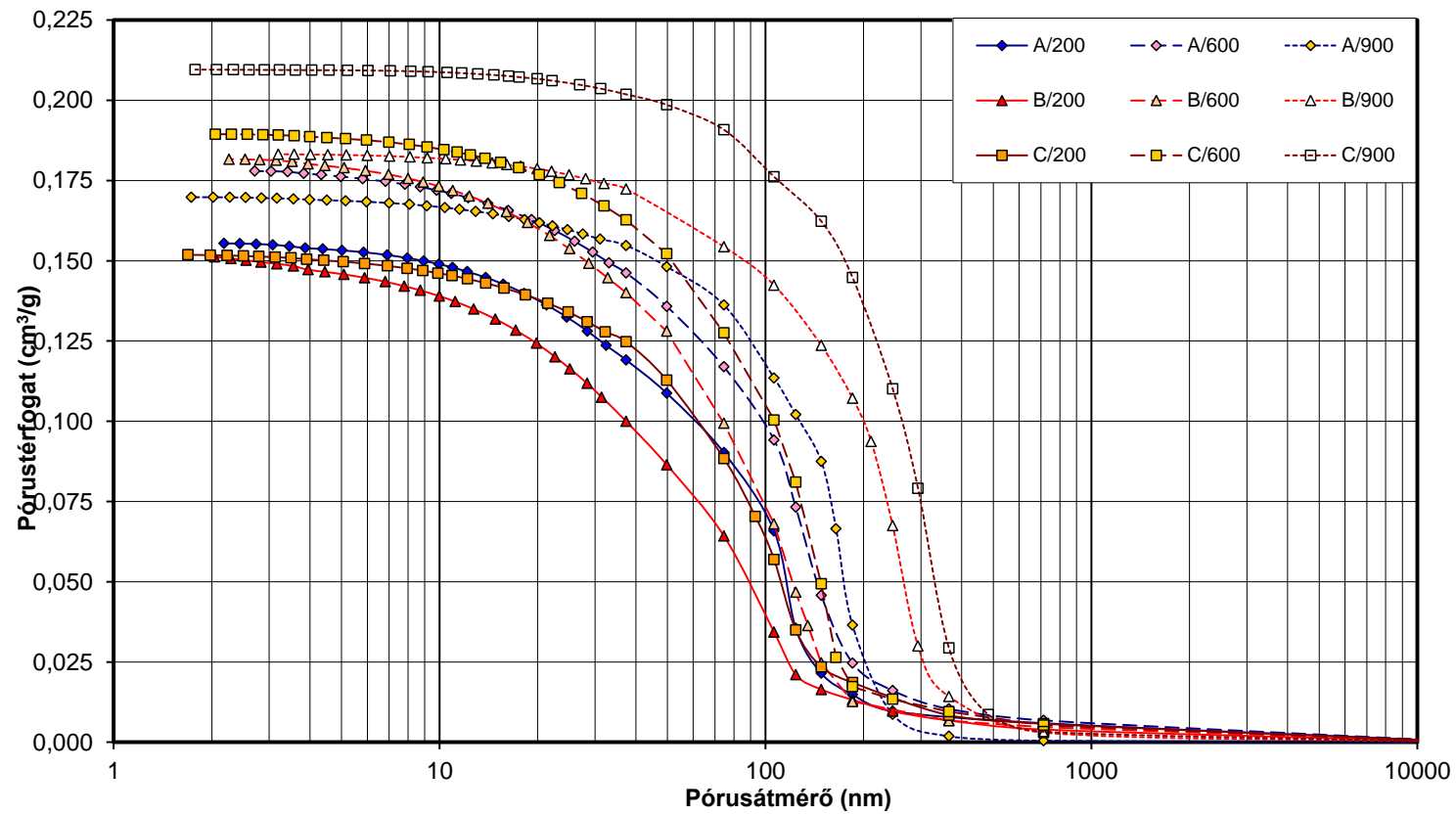
F.1-2. ábra: Nitrogénadszorpciós vizsgálat adszorpciós és deszorpciós izotermái, A és B típusú kerámiaminták (jelmagyarázat: kerámiatípus/hőkezelés hőmérséklete [°C])



F.1-3. ábra: Nitrogénadszorpció vizsgálat adszorpció és deszorpció izotermái, C típusú kerámiaminták  
(jelmagyarázat: kerámia típus/hőkezelés hőmérséklete [°C])



F.1-4. ábra: Pórusméret-eloszlás a higanypenetrációs módszer alapján  
(jelmagyarázat: kerámiatípus/hőkezelés hőmérséklete [°C])

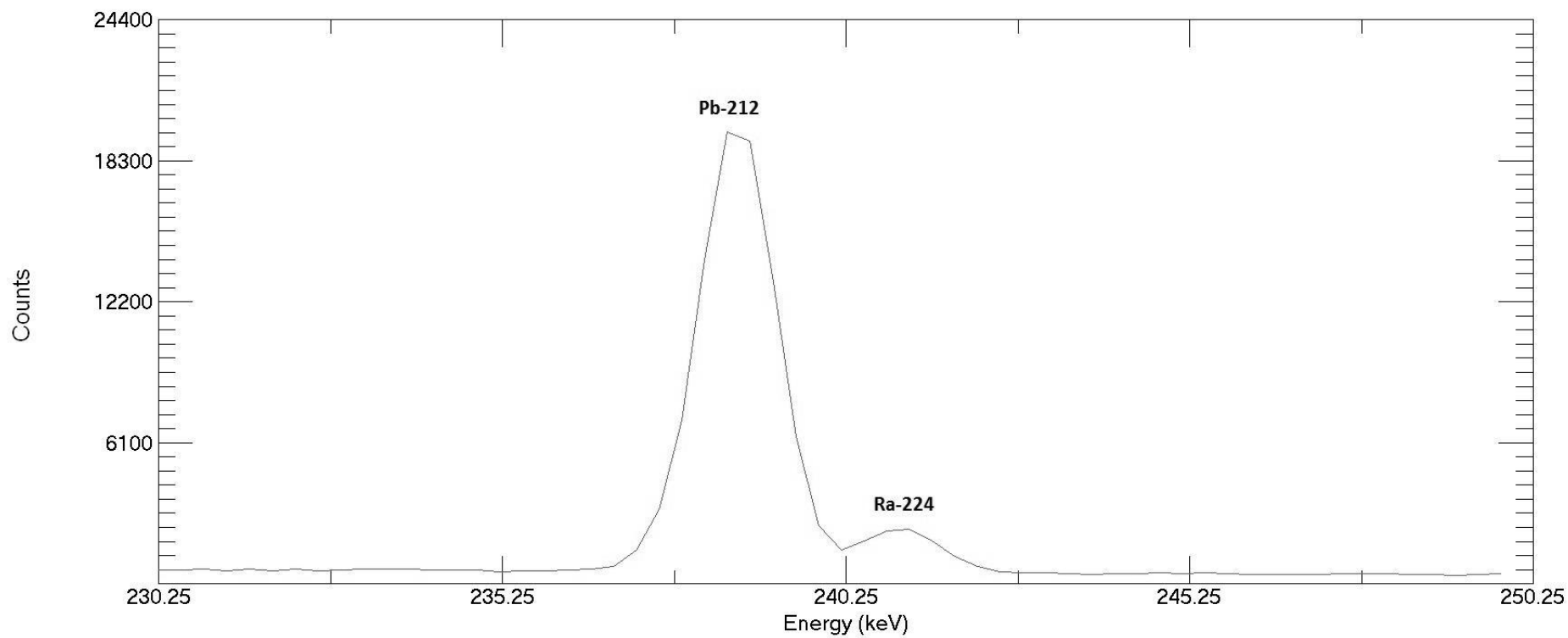


F.1-5. ábra: Kumulatív pórusméret-eloszlás  
(jelmagyarázat: kerámiatípus/hőkezelés hőmérséklete [°C])

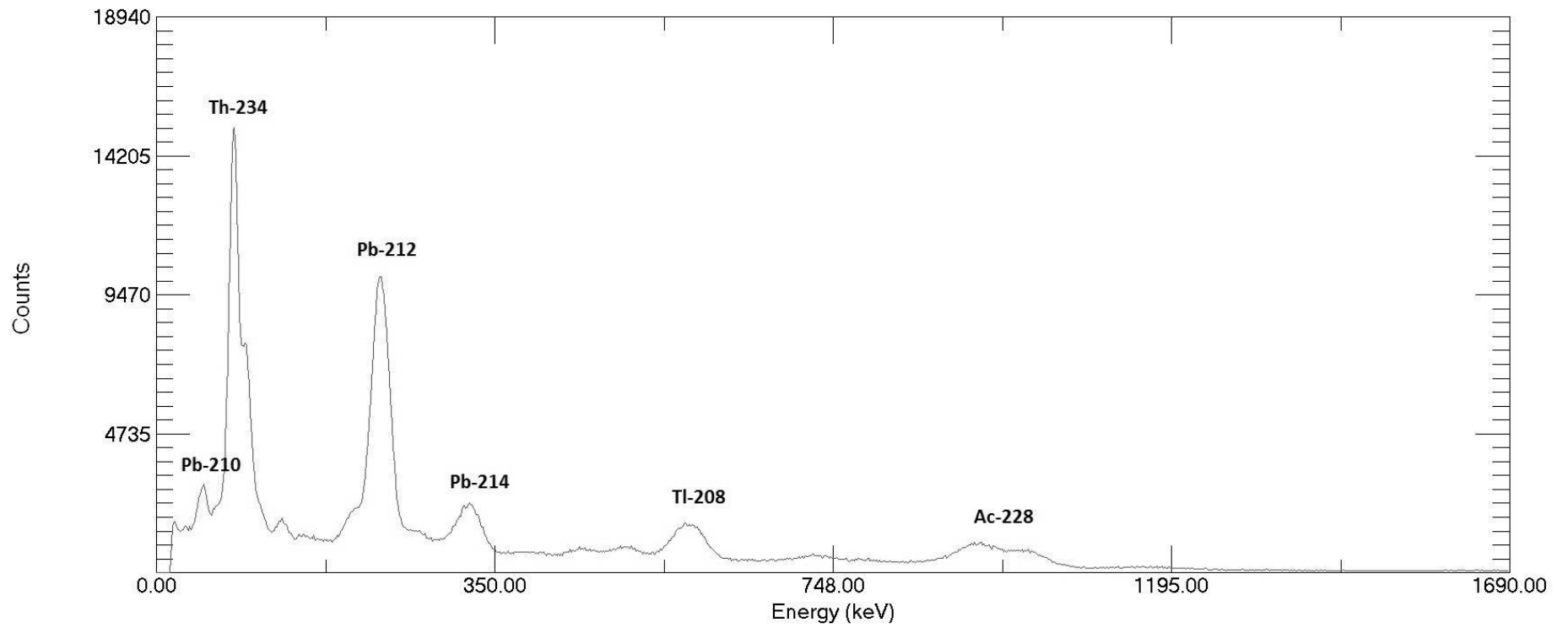
F.1-1. táblázat: Az anyagszerkezeti vizsgálatok eredményei

Minta azonosító (kerámiatípus/hőke- zelés hőmérséklete [°C])	Tömegveszteség (%)	Fajlagos felület ( $F_{BET}$ , $m^2/g$ )	Fajlagos felület ( $F_{BJH}$ , $m^2/g$ )	Fajlagos felület ( $<1,7$ nm, $m^2/g$ )	Pórustérfogat ( $<1,7$ nm, $cm^3/g$ )	Pórustérfogat ( $1,7-300$ nm, $cm^3/g$ )	Átlagos átmérő (nm)	Pórustérfogat ( $10-15000$ nm, $cm^3/g$ )	Fajlagos felület, számolt ( $10-15000$ nm, $m^2/g$ )	Pórustérfogat ( $1,7-15000$ nm, $cm^3/g$ )	Teljes pórustérfogat ( $cm^3/g$ )
A/200	0,65	10,5	13,6	0,0	0,000000	0,07071	20,1	0,1472	5,4	0,1554	0,1554
A/600	0,57	9,4	11,2	0,6	0,000170	0,06039	19,1	0,1712	5,2	0,1779	0,1781
A/900	0,25	5,55	5,9	0,5	0,000195	0,02971	17	0,1661	3,73	0,1698	0,1700
B/200	1,14	21,5	21,5	0,0	0	0,08202	12,5	0,1332	5,68	0,1517	0,1517
B/600	0,96	13,3	14,8	1,4	0,000575	0,07269	17,1	0,1761	6,41	0,1816	0,1822
B/900	0,17	3,67	3,7	0,4	0,000177	0,02464	19,3	0,1817	3,06	0,1833	0,1835
B/200	0,76	9,71	10,9	0,0	0	0,055798	16,6	0,14598	4,79	0,15186	0,1519
B/600	0,96	9,45	9,9	1,2	0,000495	0,062989	18,4	0,1839	5,27	0,18942	0,1899
B/900	0,34	3,11	2,99	0,3	0,000104	0,024514	24,1	0,20633	2,6	0,20958	0,2097

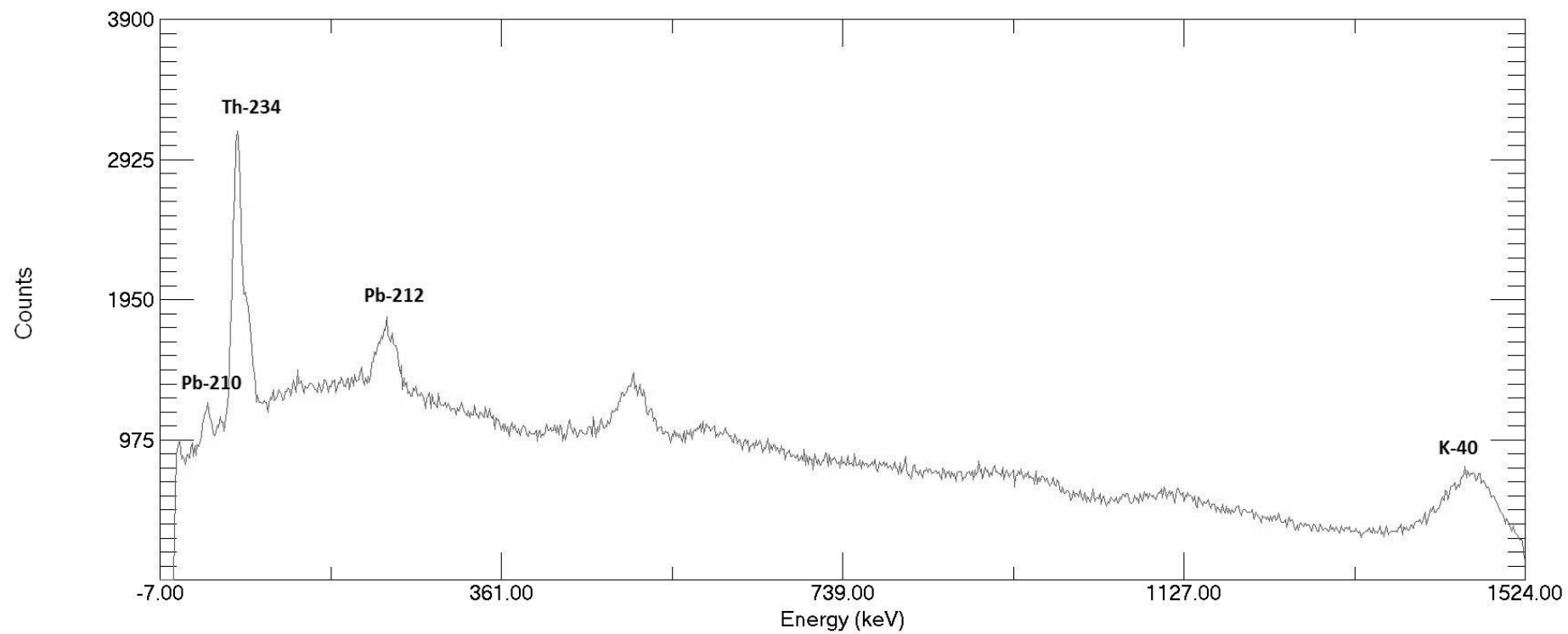
## F.2. Gamma- és alfa-spektrumok



F.2-1. ábra: A HPGe detektor felbontóképessége a Pb-212 radionuklid 239 keV energiájú és a Ra-224 radionuklid 241 keV energiájú csúcsai esetében

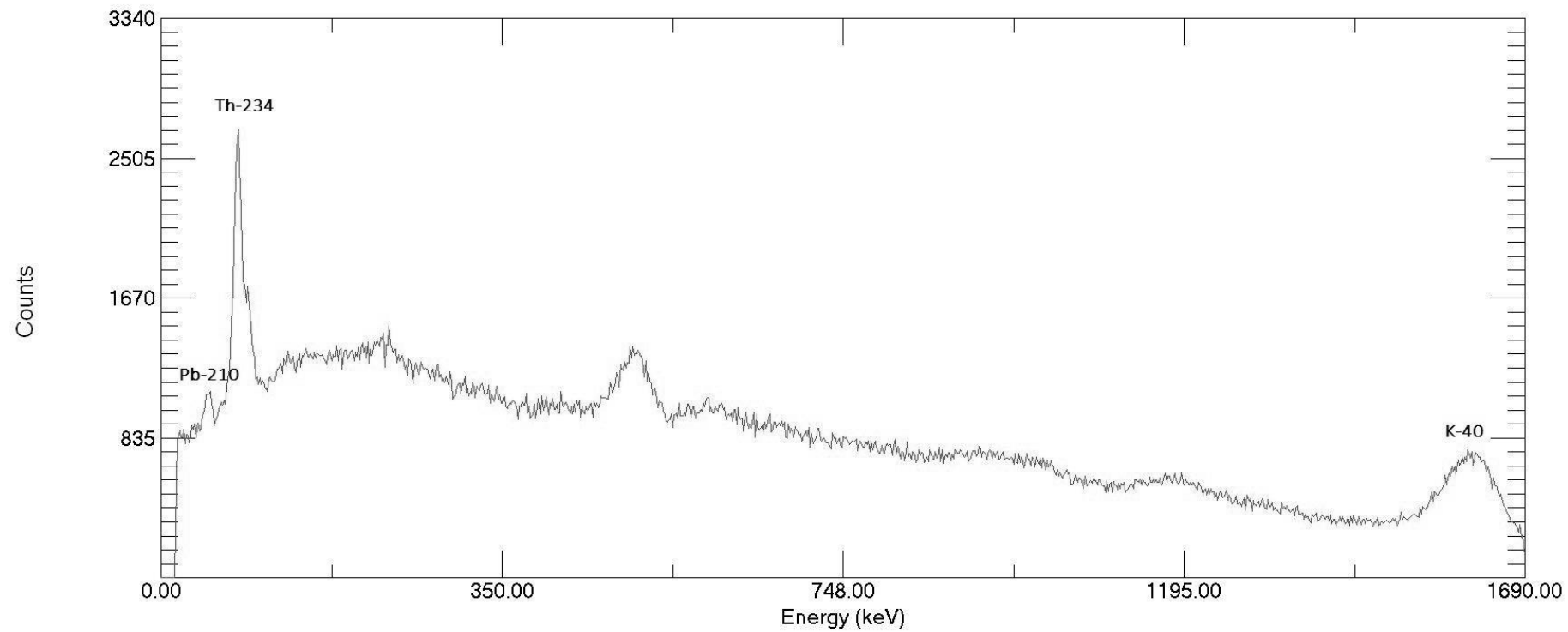


F.2-2. ábra: Japán gázharisnya szcintillációs gamma-spektruma

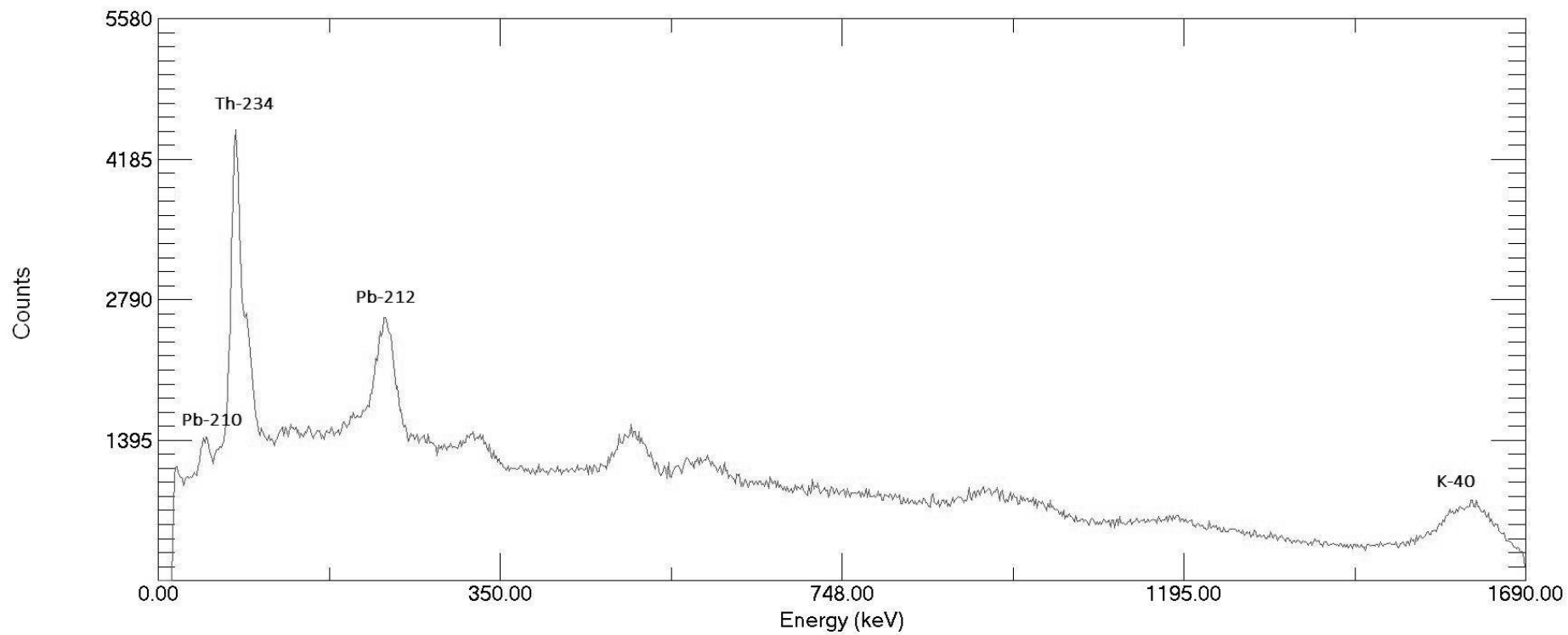


*F.2-3. ábra: Magyar 1 gázharisnya szcintillációs gamma-spektruma*

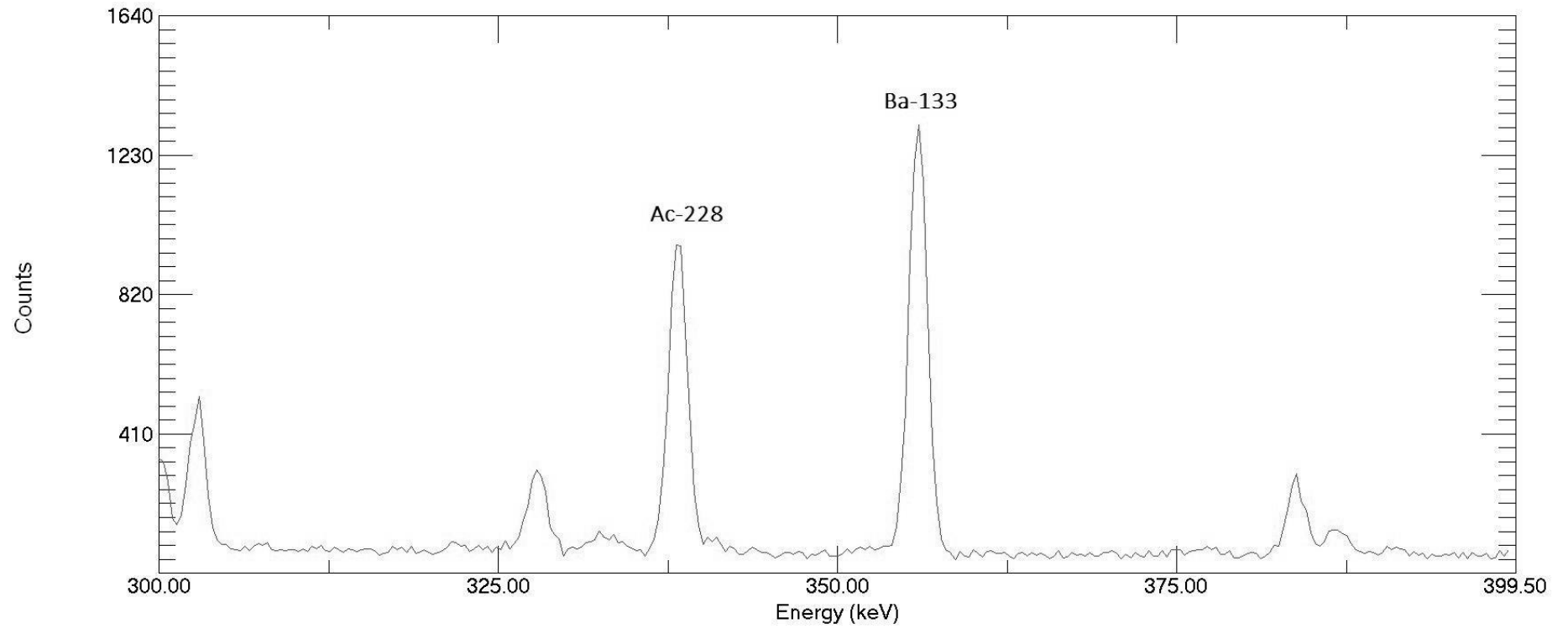




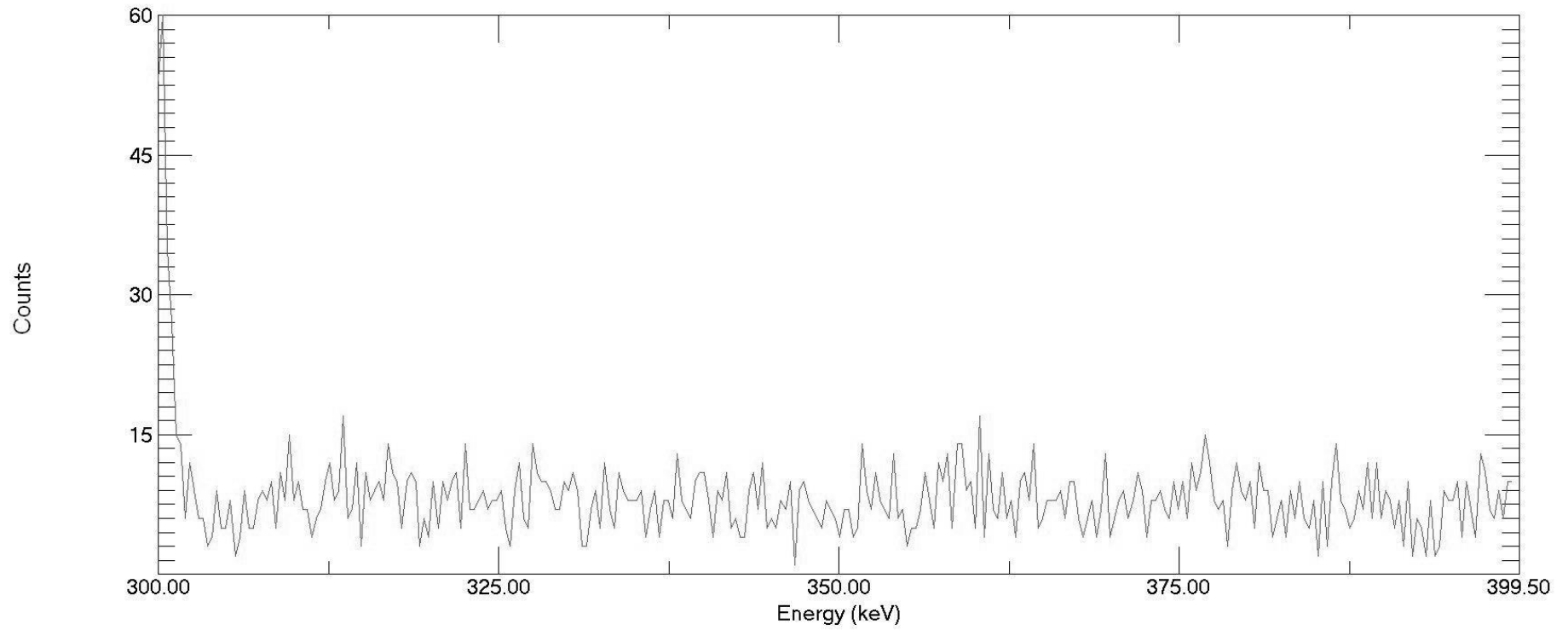
*F.2-4. ábra: Magyar 2 gázharisnya szcintillációs gamma-spektruma*



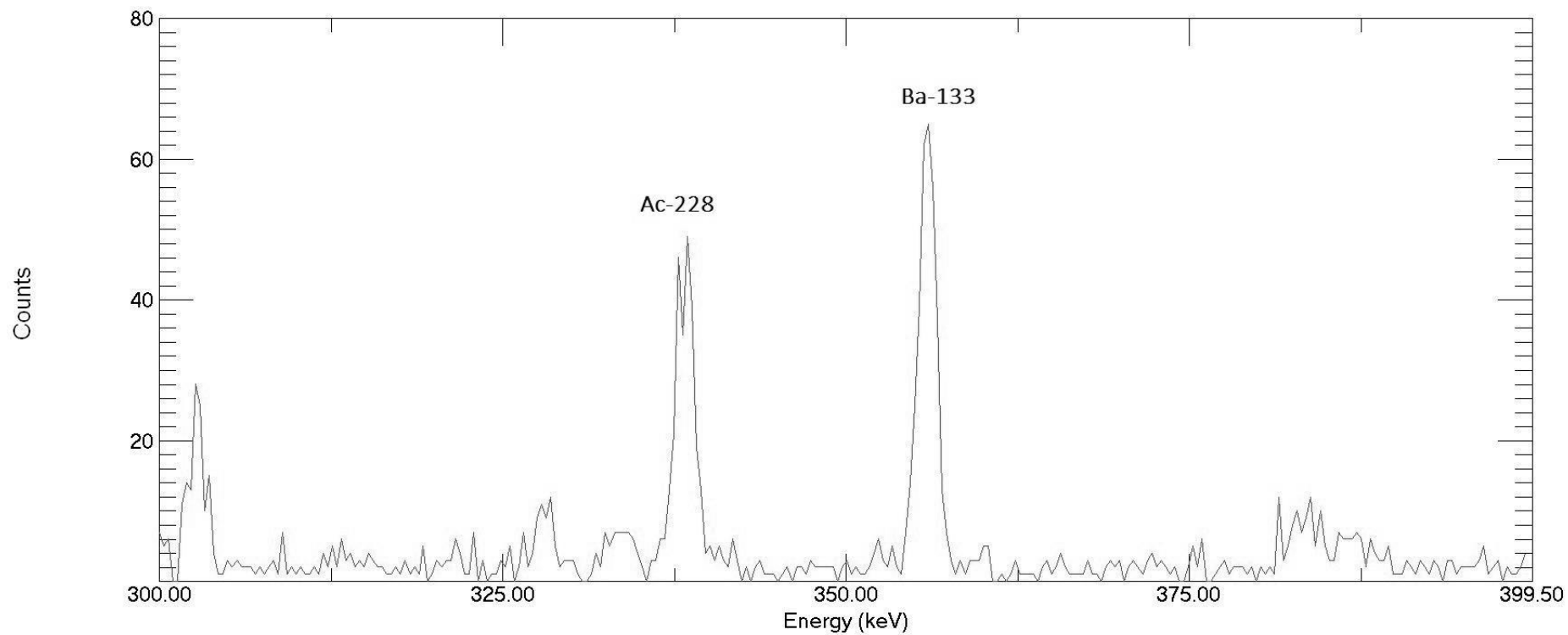
*F.2-5. ábra: Magyar 3 gázharisnya szcintillációs gamma-spektruma*



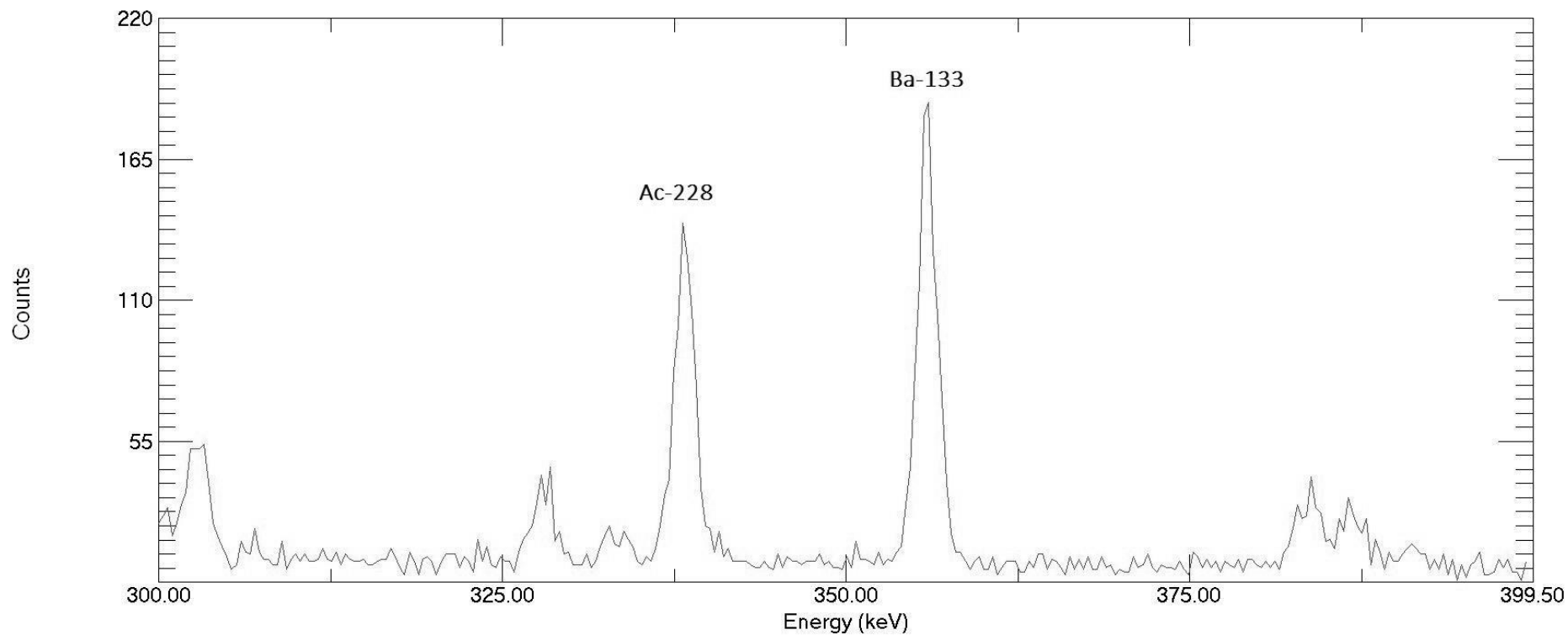
F.2-6. ábra: 8 M HNO<sub>3</sub>-alapú törzsoldat gamma-spektruma (energiatartomány: 300 – 400 keV)



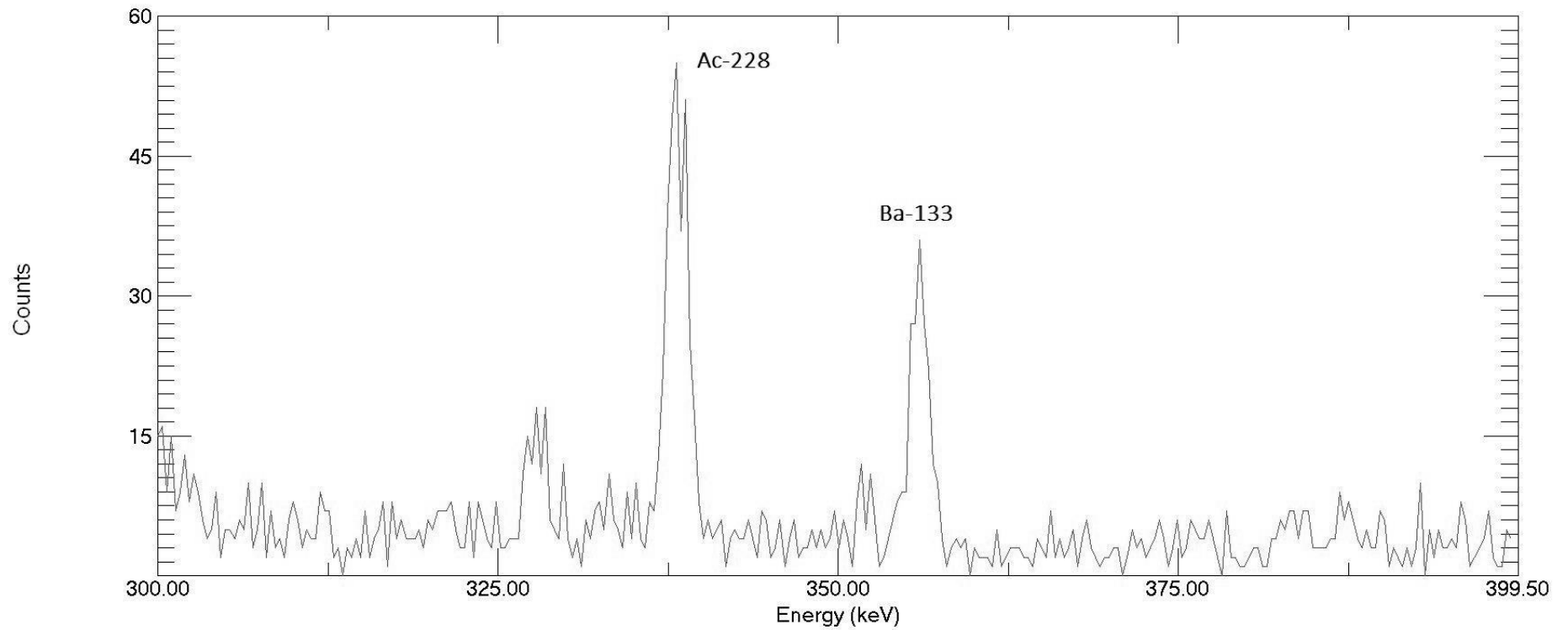
*F.2-7. ábra: DIPHONIX gyantával és HEDPA oldattal végzett aktínium elválasztás utáni mintaoldat gamma-spektruma  
(energiatartomány: 300 – 400 keV)*



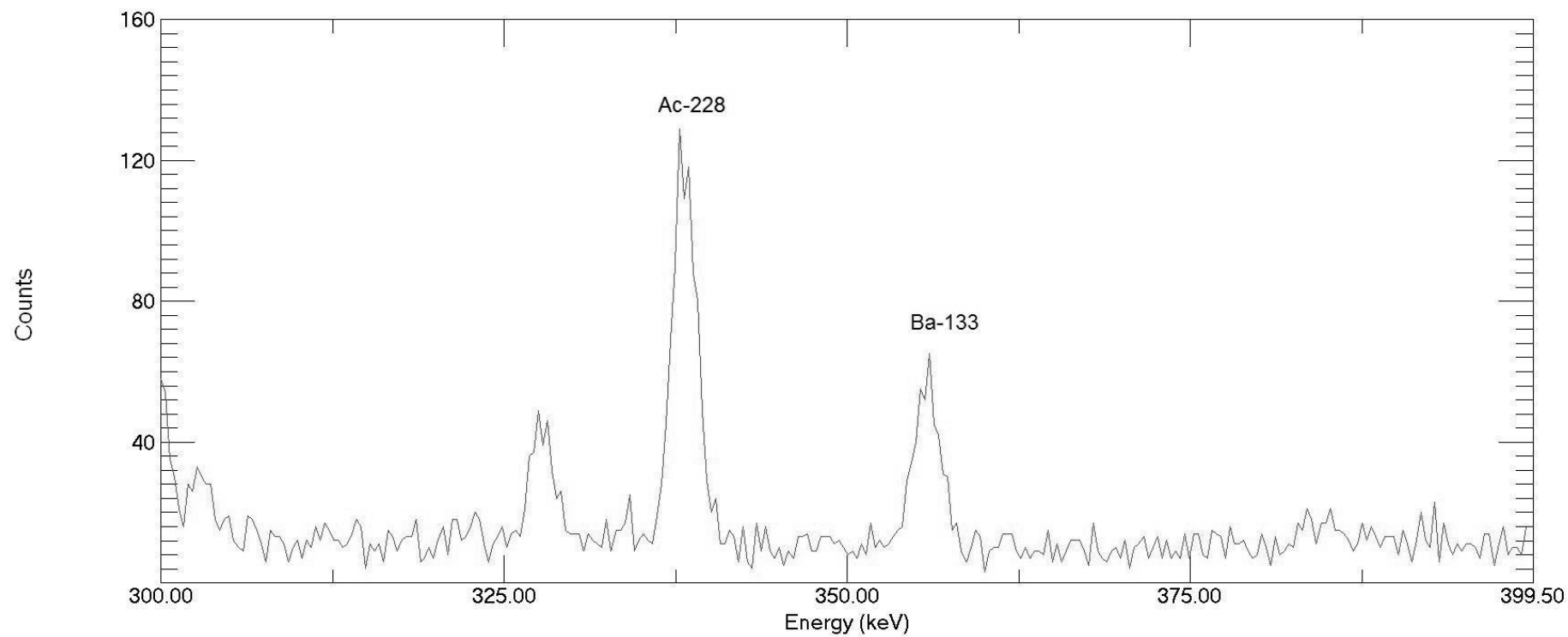
*F.2-8. ábra: DOWEX gyantával végzett rádium és aktínium megkötés, majd aktínium lemosás (B. változat) utáni mintaoldat gamma-spektruma (energiatartomány: 300 – 400 keV)*



*F.2-9. ábra: DOWEX gyantával végzett rádium és aktínium megkötés, majd aktínium lemosás (C. változat) utáni mintaoldat gamma-spektruma (energiatartomány: 300 – 400 keV)*

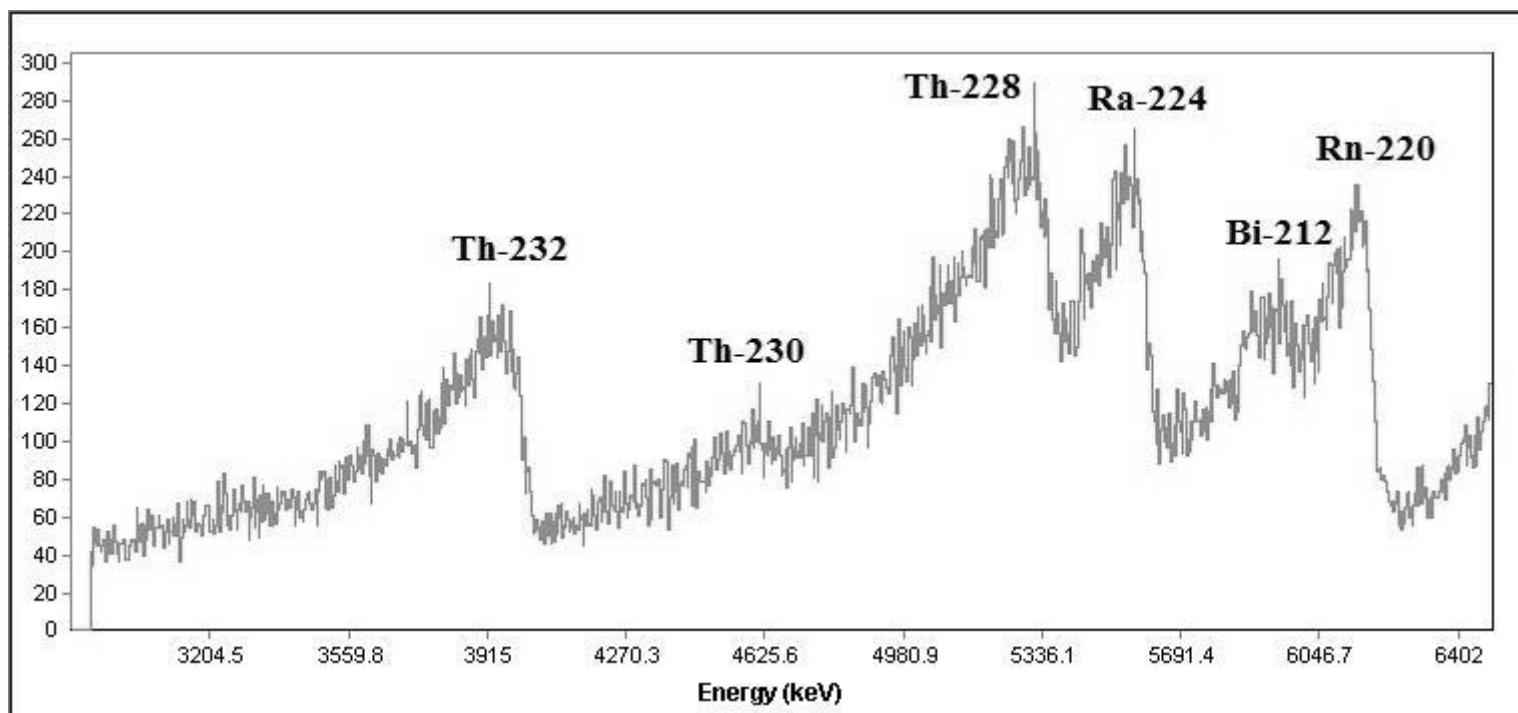


*F.2-10. ábra:  $FeCl_3$ -os csapadékképzéssel végzett aktínium elválasztás utáni mintaoldat gamma-spektruma  
(energiatartomány: 300 – 400 keV)*



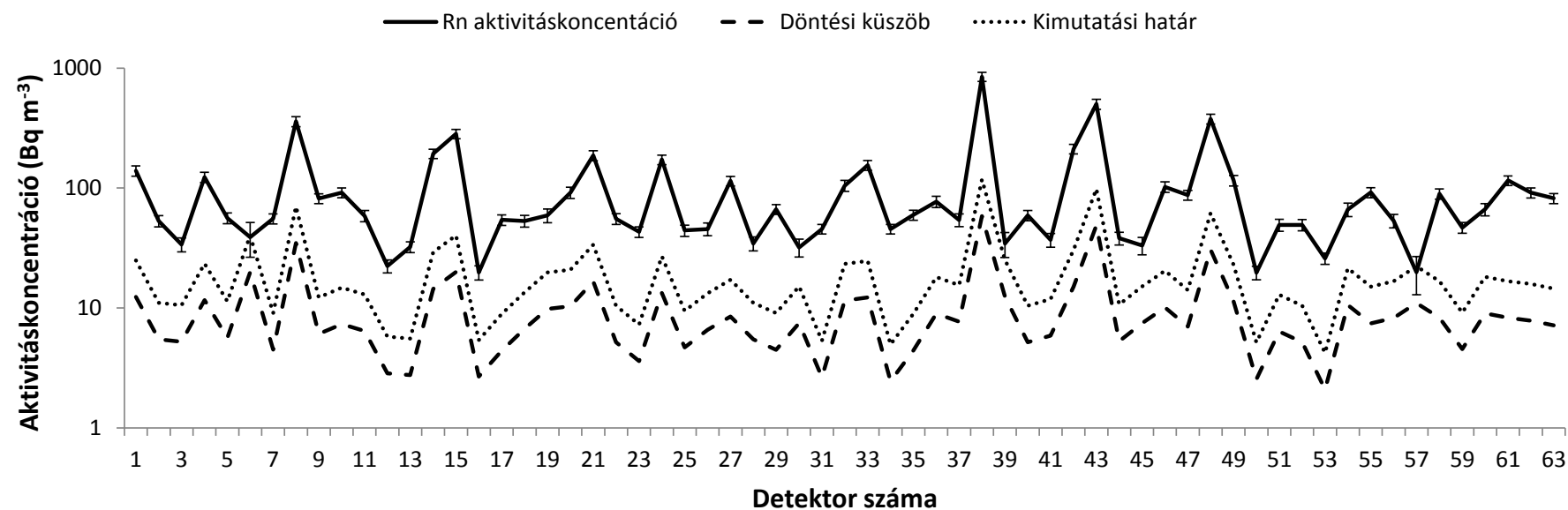
*F.2-11. ábra: FeCl<sub>3</sub>-os csapadékképzéssel végzett aktínium elválasztás utáni mintaoldat gamma-spektruma a 2. ioncserélési lépés előtt (energiatartomány: 300 – 400 keV)*



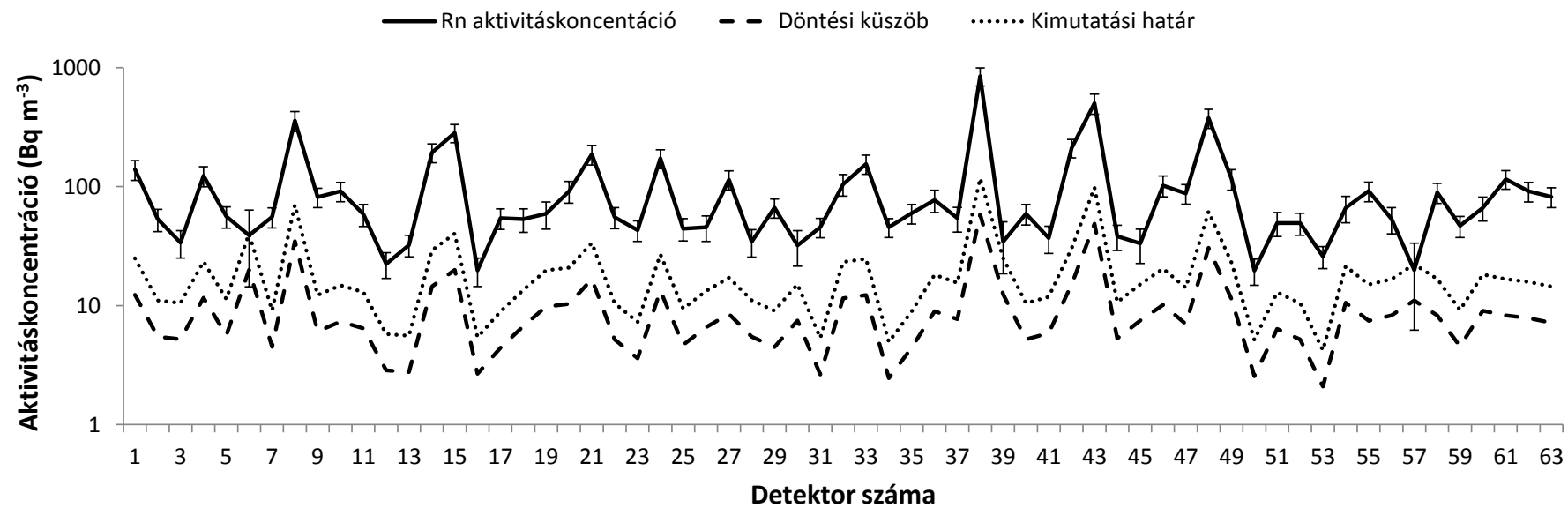


F.2-12. ábra: Elektrodepozíciós tóriumleválasztással készített forrás alfa-spektruma

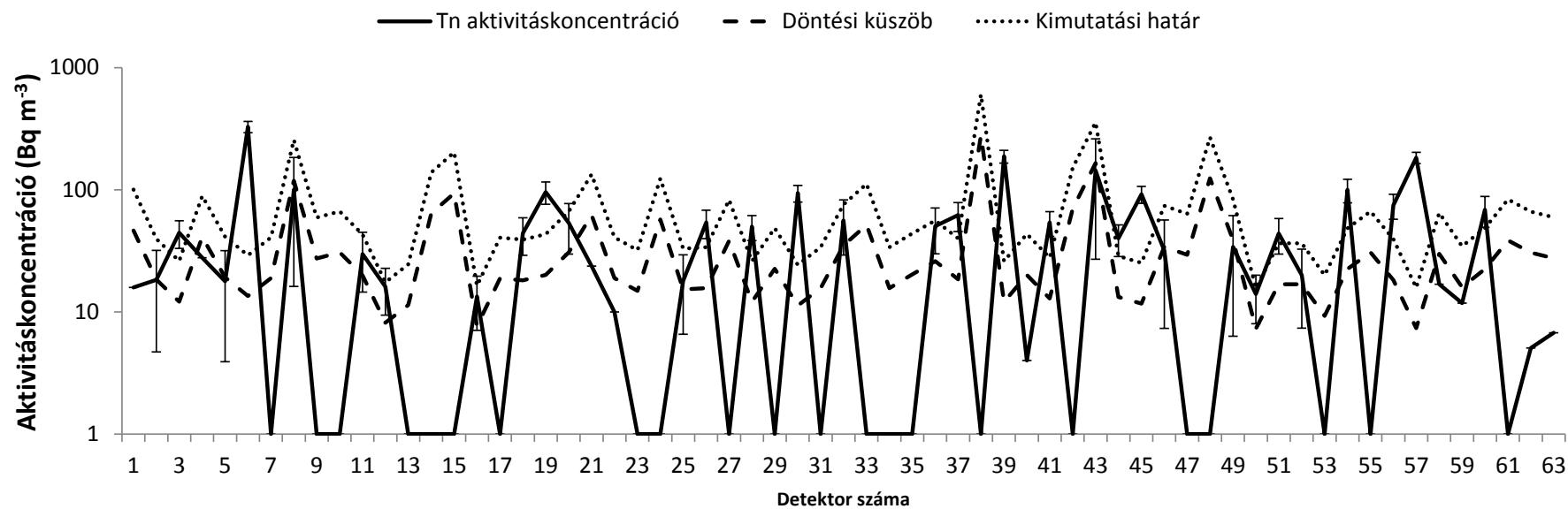
### F.3. Toronmérő nyomdetektorok kimutatási határának meghatározása



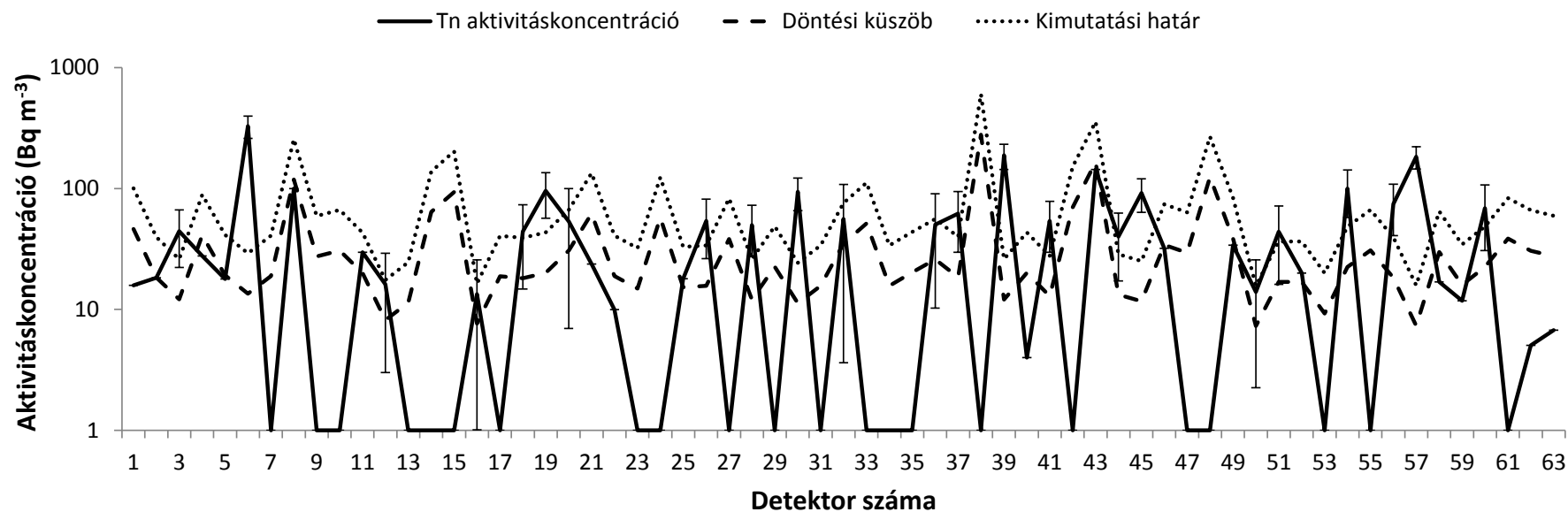
F-1. ábra: Az egyes radonmonitorok által mért aktivitáskonzentrációk (hibasávonon: standard bizonytalanság), valamint a számolt döntési küszöb és kimutatási határ értékek, környezeti mérés esetén, a függőleges tengelyen logaritmus skálát alkalmazva



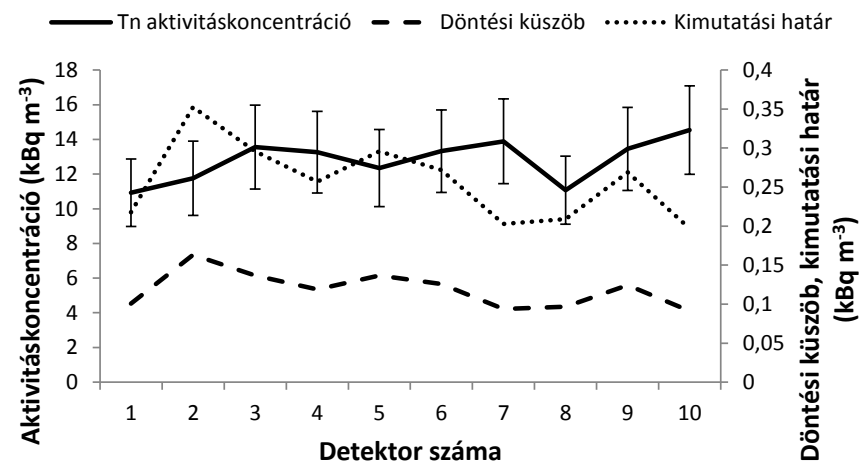
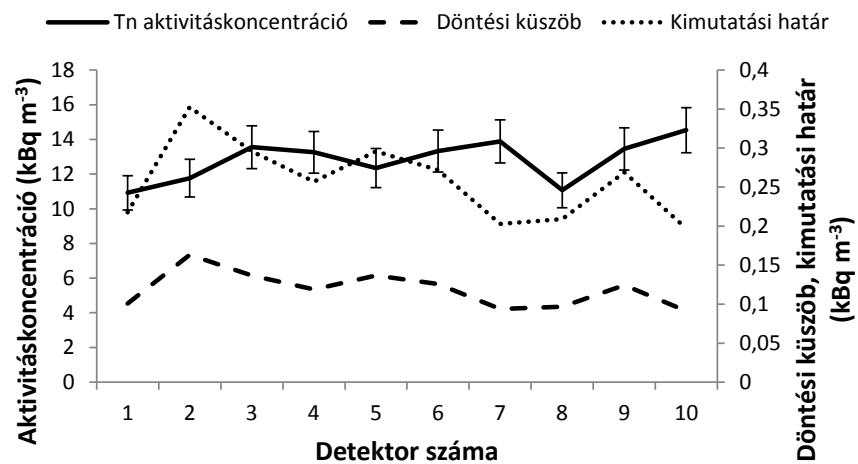
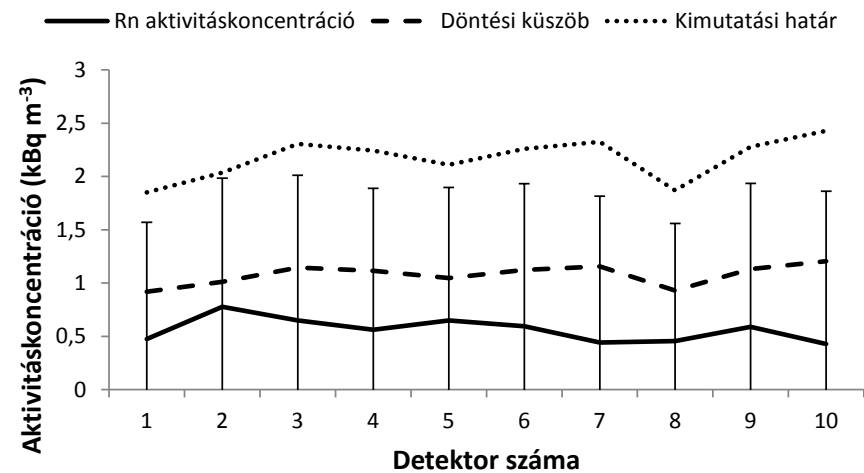
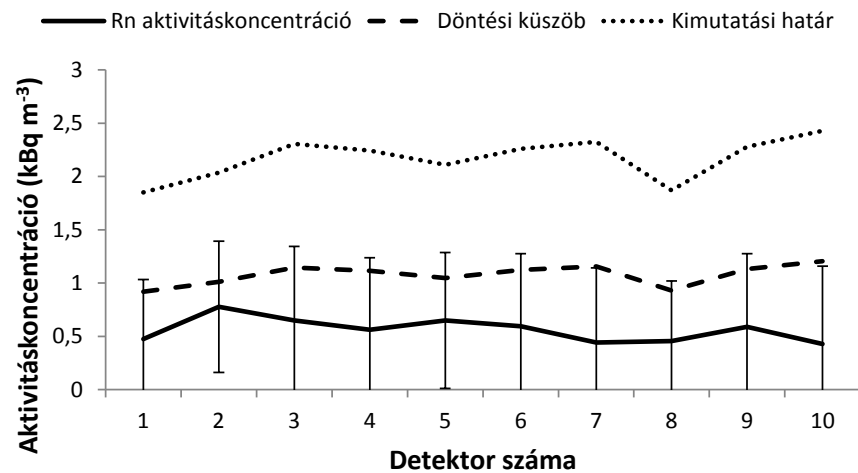
F-2. ábra: Az egyes radonmonitorok által mért aktivitáskoncentrációk (hibasávokon: 95 %-os konfidencia intervallum), valamint a számolt döntési küszöb és kimutatási határ értékek, környezeti mérés esetén, a függőleges tengelyen logaritmikus skálát alkalmazva



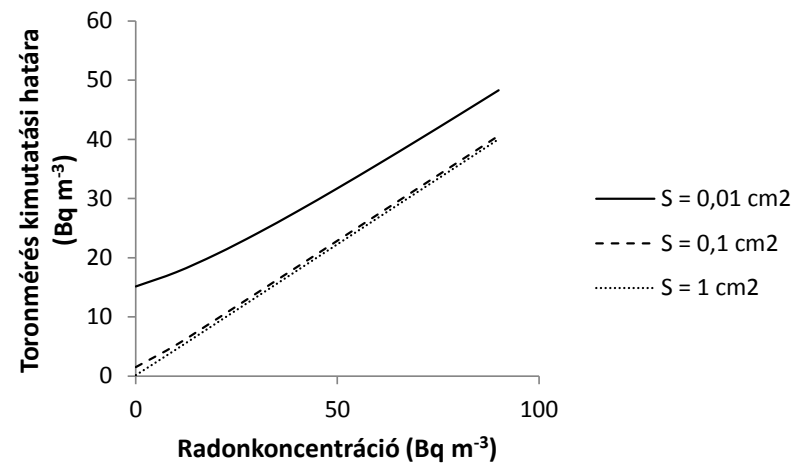
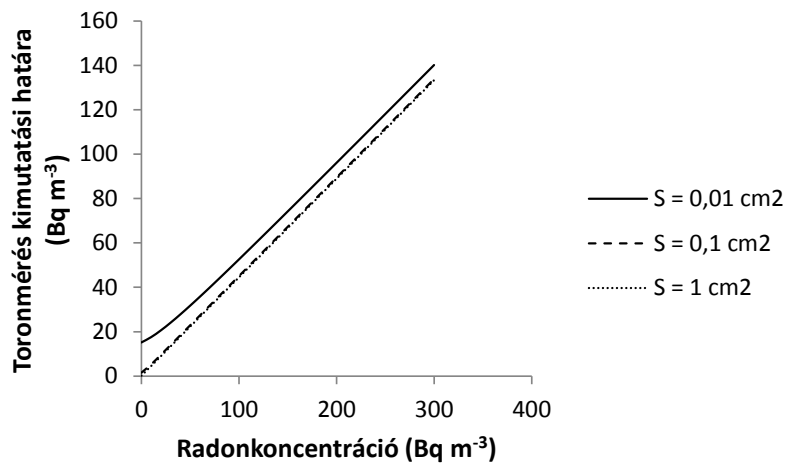
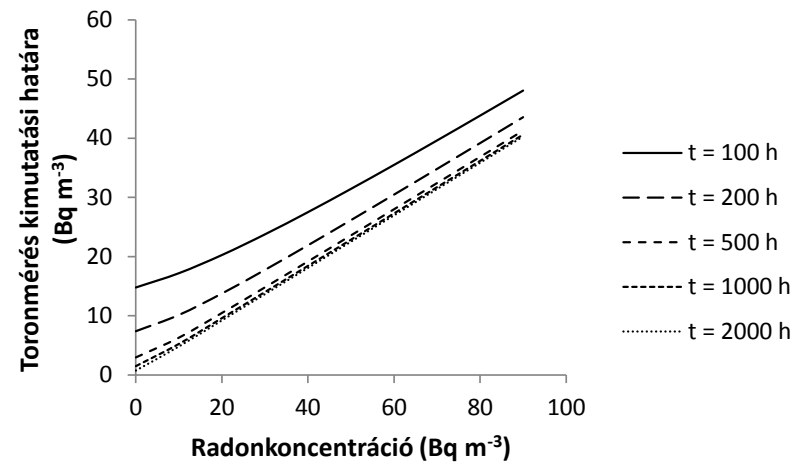
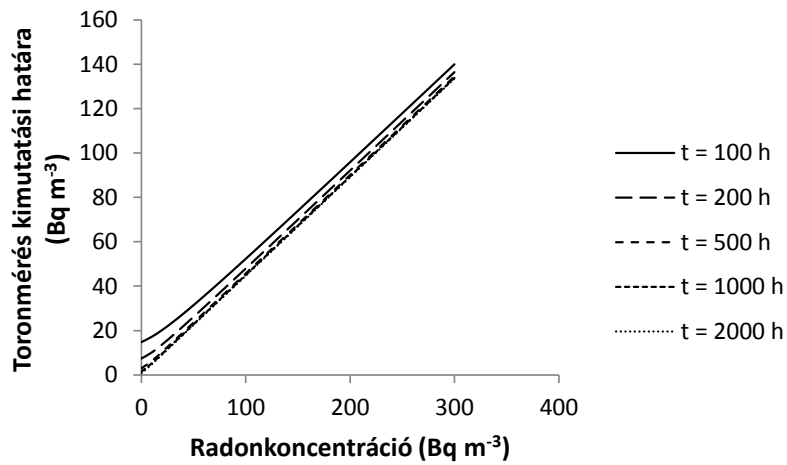
F-3. ábra: Az egyes toronmonitorok által mért aktivitáskonzentrációk (hibasávokon: standard bizonytalanság), valamint a számolt döntési küszöb és kimutatási határ értékek, környezeti mérés esetén, a függőleges tengelyen logaritmus skálát alkalmazva (a negatív aktivitáskonzentráció értékeket a logaritmus ábrázolás miatt 1 Bq m<sup>-3</sup>-nek, a negatív értékű hibasávokat nullának vettem)



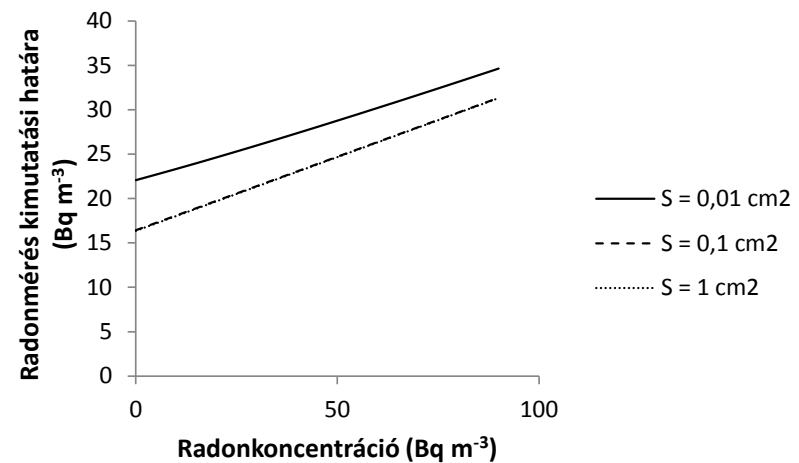
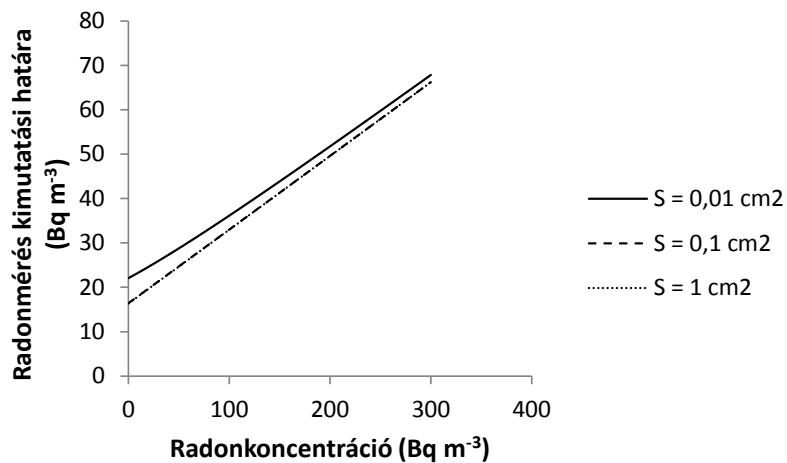
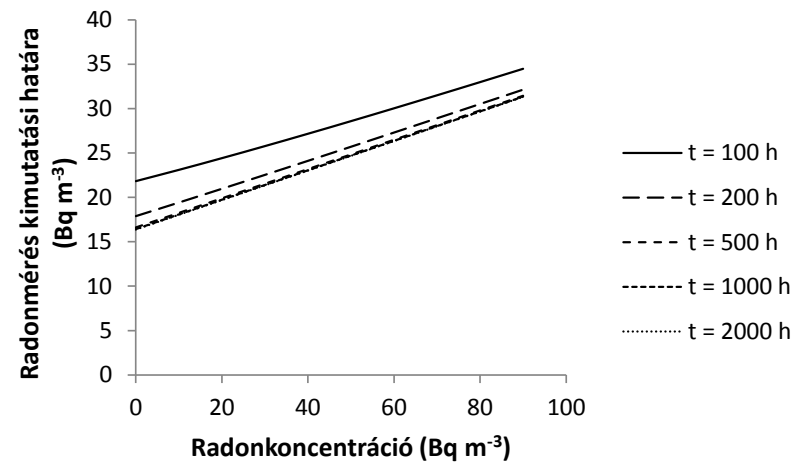
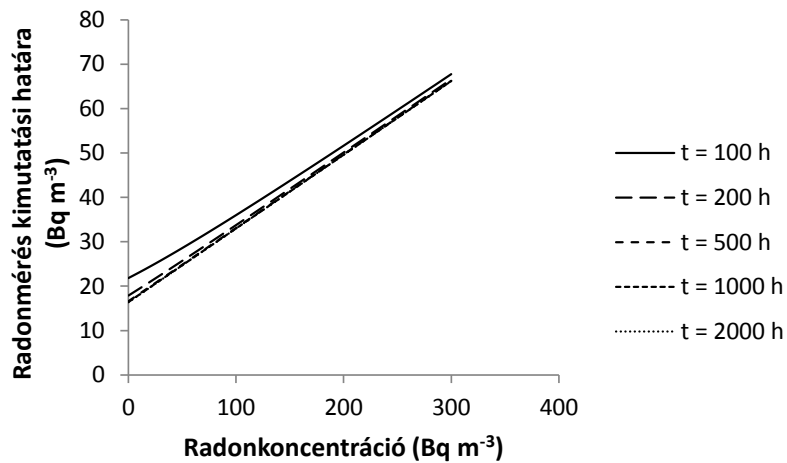
F-4. ábra: Az egyes toronmonitorok által mért aktivitáskonzentrációk (hibasávokon: 95 %-os konfidencia intervallum), valamint a számolt döntési küszöb és kimutatási határ értékek, környezeti mérés esetén, a függőleges tengelyen logaritmikus skálát alkalmazva (a negatív aktivitáskonzentráció értékeket a logaritmikus ábrázolás miatt 1 Bq m<sup>-3</sup>-nek, a negatív értékű hibasávokat nullának vettem)



F-5. ábra: Az egyes radon- (fent) és toronmonitorok által mért aktivitáskonzentrációk (balra: standard bizonytalansággal, jobbra: 95 %-os konfidencia intervallummal), valamint a számolt döntési küszöb és kimutatási határ értékek, kalibrációs mérés esetén

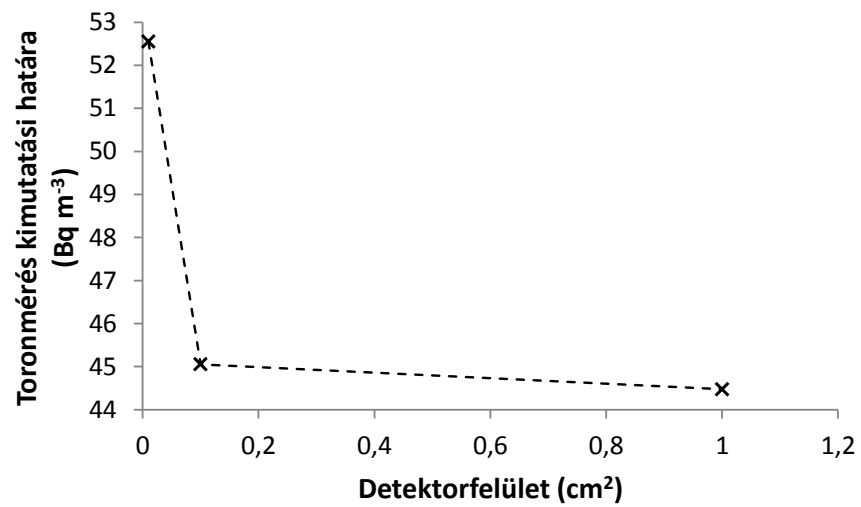
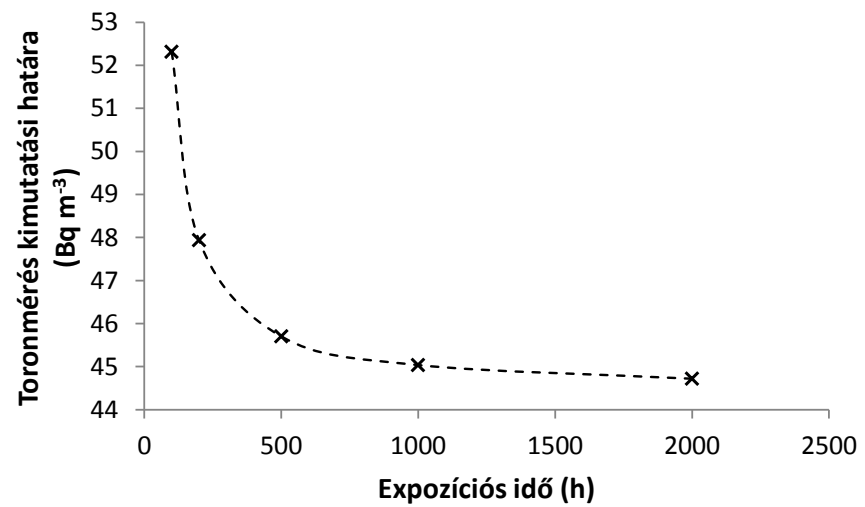


F-6. ábra: Toronmérés kimutatási határa állandó toronkoncentráció esetén, a radonkoncentráció függvényében, különböző expozíciós idő (fent) és detektorfelület (lent) alkalmazásával (jobb oldali ábrák: 0 – 100 Bq m<sup>-3</sup> radonkoncentráció közötti tartomány kinagyítva)

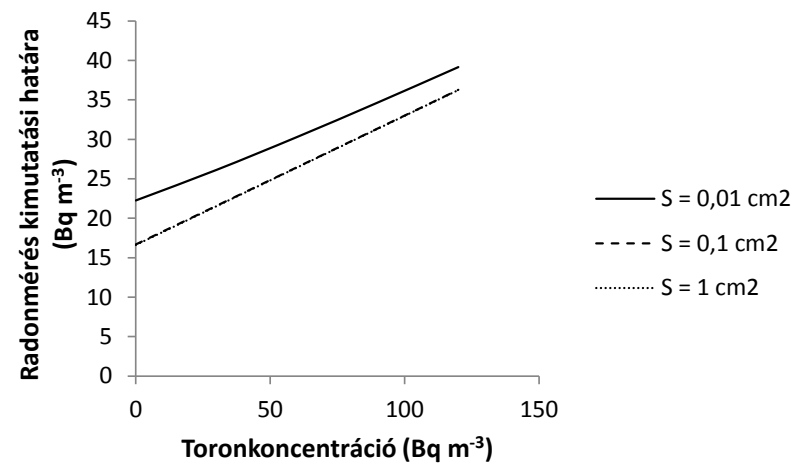
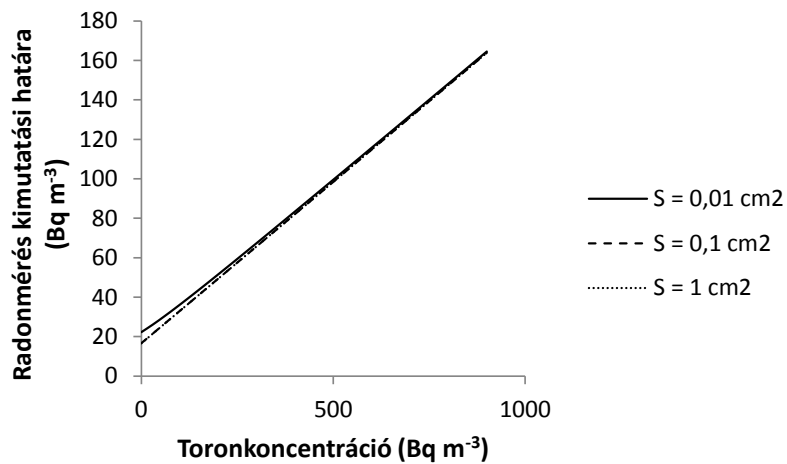
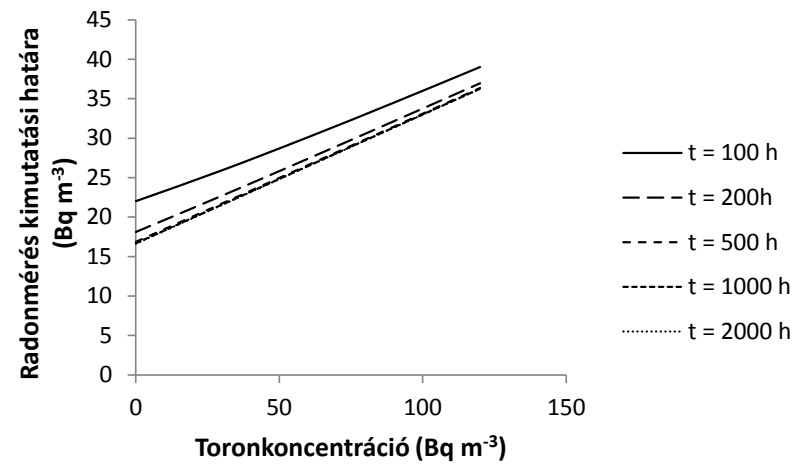
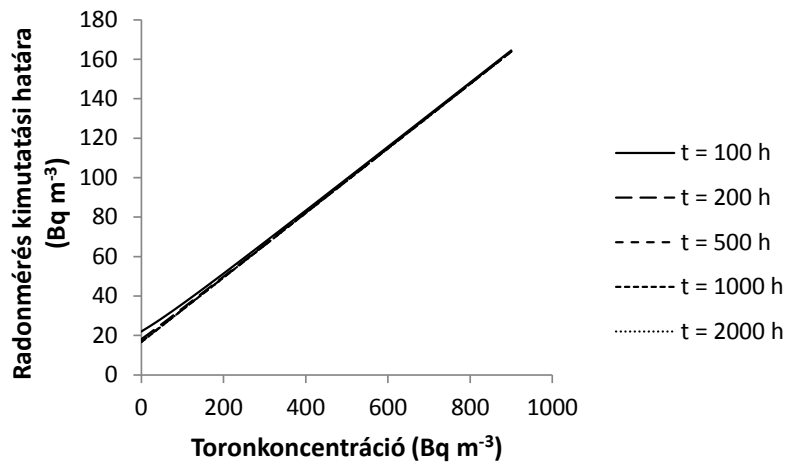


F-7. ábra: Radonmérés kimutatási határa állandó toronkoncentráció esetén, a radonkoncentráció függvényében, különböző expozíciós idő (fent) és detektorfelület (lent) alkalmazásával (jobb oldali ábrák: 0 – 100 Bq m<sup>-3</sup> radonkoncentráció közötti tartomány kinagyítva)





F-8. ábra: Toronmérés kimutatási határa állandó radonkoncentráció esetén, az expozíciós idő (balra) és a detektorfelület (jobbra) függvényében



F-9. ábra: Radonmérés kimutatási határa állandó radonkoncentráció esetén, a toronkoncentráció függvényében, különböző expozíciós idő (fent) és detektorfelület (lent) alkalmazásával (jobb oldali ábrák: 0 – 100 Bq m<sup>-3</sup> radonkoncentráció közötti tartomány kinagyítva)

## **TÉZISEK**

### **1. Kalibráló kamra fejlesztése**

Igazoltam, hogy a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében kialakított toron kalibráló kamra jól szabályozható, így alkalmas nyomdetektorok kalibrációjára.

A kamra releváns paraméterei, úgymint a hőmérséklet és a páratartalom, szabályozhatók és állandó szinten tarthatók. A hőmérséklet a laboratórium klímaberendezésével stabilizálható, az 50 órás tesztmérés alatt mért értékek szórása 0,7 °C. A páratartalom az erre a célra kialakított párasító kamrából és páramentesítőből álló egységgel szabályozható. A páratartalom az egység keverőkamrájában 10 – 90 % érték között beállítható a száraz és a nedves ág térfogatáramának változtatásával.

Tesztmérésekkel támasztottam alá, hogy a kamrában kialakított torondús levegő nem szivárog a környezetbe, tehát a kamra tömítései megfelelők.

Térbeli homogenitás vizsgálatokkal igazoltam, hogy a kialakított toronkoncentráció 30 – 50 cm mélységben kellően homogén.

### **2. Referencia módszer kiválasztása**

Megvizsgáltam a toronmérésnél alkalmazható referencia eljárásokat. Az eredmények alapján megállapítottam, hogy az általam kiválasztott ZnS(Ag) szcintillátoranyaggal bevont Lucas-cellával történő mintavétel, majd a kétszeri impulzusszámlálásos módszer (two counts method, TCM) szerinti beütésszámlálás erre a célra alkalmas. A Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében kialakított kalibráló kamra esetében a javasolt mérőműszer a Pylon AB-5 számláló 300A típusú Lucas-cellával.

A rendelkezésre álló aktív mérőműszerekkel való összemérés során bemutattam, hogy a referencia eljárásként kiválasztott szcintillációs módszer ezekkel jó egyezést mutat, az eredmények közötti eltérés minden műszer esetében 10 % alatti.

### **3. Forrásfejlesztés**

#### **3.1. Kerámiaalapú toronforrások vizsgálata**

Megvizsgáltam a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében használt kerámiaalapú toronforrások továbbfejlesztési lehetőségeit. A vizsgálatok alapján megállapítottam, hogy az alacsony hőmérsékletű hőkezelés az optimális a magas toronemanáló képesség eléréséhez. Ezek alapján a 200 °C-on történő hőkezelést ajánlottam, valamint javaslatot tettem az alkalmazandó kerámia típusára.

Akkumulációs módszerrel végzett emanációmérés útján igazoltam, hogy a kerámiaalapú toron referencia anyagokkal a toronaktivitás-koncentráció széles spektrumon változtatható ( $2,73 \pm 0,43 \text{ kBq m}^{-3}$  –  $179,72 \pm 3,13 \text{ kBq m}^{-3}$ , átlag:  $45,05 \pm 0,31 \text{ kBq m}^{-3}$ ), és viszonylag magas emanációs tényező érhető el (max.  $7,69 \pm 0,13 \%$ ).

#### **3.2. Radonmentes toronforrás kialakítására irányuló kísérletek**

Megvizsgáltam az egyensúlyi összetételű tórium-nitrátból készült toronforrás radonmentesítésének lehetőségeit. Modellszámítások alapján megállapítottam, hogy mind a tórium, mind az aktínium kémiai elválasztása alkalmas lehet radonmentes toronforrás készítésére. A tóriumelválasztás elve, hogy ugyan az elválasztott elegy is tartalmazza a számunkra előnytelen Th-230 izotópot, azonban az egyensúlyi viszonyoknak köszönhetően a forrás hosszú ideig radonmentes marad. Ezzel szemben az aktínium elválasztása az egyensúlyi viszonyok miatt nem kimondottan előnyös, azonban ez az egyetlen módszer, amellyel olyan forrás készíthető, amely kizárólag a számunkra kedvező izotópokat (Th-232 bomlási sor elemei) tartalmazza.

A gyakorlatban öt aktínium, és egy tórium szeparációs eljárást teszteltem, mely során megállapítottam, hogy a  $\text{FeCl}_3$ -os csapadékképzésen alapuló aktíniumelválasztás alkalmassá tehető Th-228 izotópgenerátor gyártására.

### **4. Kalibrációs módszer**

Kidolgoztam a CR-39 alapú diszkriminatív toronmonitorok kalibrálására alkalmas mérési protokollt. Tesztmérésekkel igazoltam, hogy az általam javasolt módszer a gyakorlatban kellő pontossággal megvalósítható.

Megadtam a nyomdetektoros toronmérésre vonatkozó releváns statisztikai paramétereket, úgymint a döntési küszöbértéket, a módszer kimutatási határértékét, valamint a 95 %-os valószínűségű konfidencia intervallum határait. Az átlagos kimutatási határ, átlagos környezeti szintű mérési helyzetben, az általam alkalmazott CR-39 alapú diszkriminatív monitorok esetén  $20 \text{ Bq m}^{-3}$  radonra,  $75 \text{ Bq m}^{-3}$  toronra (átlagos mérési idő: 2875 óra, átlagos számolt koncentráció:  $104 \text{ Bq m}^{-3}$  radon,  $28 \text{ Bq m}^{-3}$  toron), míg kalibrációs mérés esetén  $2171 \text{ Bq m}^{-3}$  radonra,  $257 \text{ Bq m}^{-3}$  toronra (mérési idő: 115,7 óra, átlagos számolt koncentráció:  $562 \text{ Bq m}^{-3}$  radon,  $12\,810 \text{ Bq m}^{-3}$  toron).

Részletesen vizsgáltam a kimutatási határok értékeinek aktivitáskoncentrációfüggését. Ezek alapján megadtam egy egyszerű, lineáris empirikus összefüggést, mellyel a releváns paraméterek (koncentrációszintek, expozíciós idő, detektorfelület) ismeretében a kimutatási határ értékek gyorsan becsülhetők.

Végezetül bemutattam, hogy az általam javasolt módszer megfeleltethető az MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 szabvány követelményeinek, így alkalmassá tehető a szabvány szerint akkreditált kalibrálólaboratóriumban való alkalmazásra.

# **THESES**

## **1. Improvement of calibration chamber**

It has been proved that the calibration chamber had been established at the Institute of Radiochemistry and Radioecology at University of Pannonia is well-controllable; therefore, it is suitable for calibration of solid state nuclear track detectors.

The relevant parameters of the chamber, such as temperature and humidity, can be controlled and held on a constant level. The temperature can be stabilized with the A/C device in the laboratory. The standard deviation of the values measured during the 50 hours long test period was 0.7 °C. The humidity can be controlled with a special equipment developed for this task which contains humidifier and dehumidifier units. The humidity in the mixing chamber of the control unit can be set in a range of 10 – 90 % through the flow rate of dry and wet legs.

It has been proved by test measurements that the thoron atmosphere inside the chamber does not leak to the environment due to the proper sealing of the chamber.

It has been proved by spatial homogeneity tests that the thoron concentration inside the chamber is properly homogenous in 30 – 50 cm depth.

## **2. Selection of reference method**

Several reference methods appropriate for thoron measurements were tested. Based on the results it can be stated that the proposed technique (sampling with ZnS(Ag) Lucas scintillation cell and pulse counting according to two counts method) is suitable. In case of calibration chamber at the Institute of Radiochemistry and Radioecology at University of Pannonia the proposed device is Pylon AB-5 counter with 300A Lucas cell.

Comparison measurements with the available active devices and the selected reference method were performed. During these it was proved that the results of the active devices and reference method show good agreement; the deviation in all cases is less than 10 %.

### **3. Source improvement**

#### **3.1. Examination of ceramic-based thoron sources**

The possibilities of improvement of ceramic-based thoron sources applied at the Institute of Radiochemistry and Radioecology at University of Pannonia were examined. Based on the experiments it has been found that heat treatment on low temperatures is advantageous for high thoron emanation rates; therefore, heat treatment on 200 °C has been proposed and a suggestion has been made for the type of the ceramic.

It has been proved by emanation measurement by accumulation method that the thoron activity concentration is variable on wide range with ceramic-based reference materials ( $2,73 \pm 0,43 \text{ kBq m}^{-3} - 179,72 \pm 3,13 \text{ kBq m}^{-3}$ , average:  $45,05 \pm 0,31 \text{ kBq m}^{-3}$ ) and a relatively high emanation coefficient can be reach (max.  $7,69 \pm 0,13 \%$ ).

#### **3.2. Experiments on the preparation of radon-free thoron source**

The possibilities of preparation of radon-free thoron source from thorium-nitrate with natural composition were examined. Based on model calculations it was found that the chemical separation of both the thorium and actinium isotopes can be capable for radon-free thoron source preparation. The theory of thorium separation is that although the separated solution also contains the disadvantageous Th-230 isotope; however, the source will be radon-free for a long time due to the equilibrium conditions. By contrast, from the separation of actinium seems disadvantageous due to the equilibrium conditions; however, this is the only method which can be capable to prepare such a source which contains only the favourable isotopes (elements of Th-232 decay series).

Five actinium and one thorium separation techniques were tested in practice, from which the actinium separation based on precipitation with  $\text{FeCl}_3$  can be capable for preparation of Th-228 isotope generator.

### **4. Calibration method**

A measurement protocol for calibration of CR-39-based discriminative thoron monitors was developed. It has been proved by test measurements that the proposed method is practicable.

The relevant statistical parameters for thoron measurement with solid state nuclear track detectors (i.e. decision threshold, detection limit, 95 % confidence interval) were calculated. The average detection limits in average environmental conditions, in case of the applied CR-39-based discriminative monitors, are 20 Bq m<sup>-3</sup> for radon and 75 Bq m<sup>-3</sup> for thoron (average exposure period: 2875 h, average calculated concentration: 104 Bq m<sup>-3</sup> radon and 28 Bq m<sup>-3</sup> thoron). In case of calibration the detection limits are 2171 Bq m<sup>-3</sup> for radon and 257 Bq m<sup>-3</sup> for thoron (exposure period: 115.7 h, average calculated concentration: 562 Bq m<sup>-3</sup> radon and 12 810 Bq m<sup>-3</sup> thoron).

Detailed analysis was performed concerning the activity concentration dependency of detection limit values. Based on this a simple, linear empirical equation has been given, from which, if the relevant parameters (concentration levels, exposure time and detector surface) are known, the detection limits can be easily estimated.

Finally, it was presented that the proposed method can meet the requirements of MSZ EN ISO/IEC 17025:2005 standard; therefore, it can be applicable in accredited calibration laboratories.



## PUBLIKÁCIÓS TEVÉKENYSÉG

### Az értekezés témájával kapcsolatos publikációk

#### Cikkek

1. F. Fábíán, A. Csordás, Z. Sas, T. Kovács: **Preparation of a radon-free thoron source for a thoron calibration chamber**. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 311(2), pp. 1169-1175, 2017. (IF: 1,282)
2. A. Csordás, F. Fábíán, M. Horváth, M. Hegedűs, J. Somlai, T. Kovács: **Preparation and characterisation of ceramic-based thoron sources for thoron calibration chamber**. Radiation Protection Dosimetry 167(1-3), p. 151, 2015. (IF: 0,917)
3. F. Fábíán, A. Csordás, A. Shahrokhi, J. Somlai, T. Kovács: **Calibration of CR-39-based thoron progeny device**. Radiation Protection Dosimetry 160(1-3), pp. 169-172, 2014. (IF: 0,917)

#### Konferencia kiadványok

1. F. Fábíán, A. Csordás, T. Kovács: **Development of calibration protocol for CR-39 based SSNTDs used for thoron calibration measurements**. V. Terrestrial Radioisotopes in Environment: International Conference on Environmental Protection, Veszprém, ISBN: 978-963-12-5537-9, p. 68, 2016.
2. F. Fábíán, A. Csordás, T. Kovács, Z. Sas: **Preparation of optimal thoron source for thoron calibration chamber**. International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Budapest, ISBN: 978-963-05-9699-2, p. 191, 2016.
3. G. Bátor, F. Fábíán, E. Tóth-Bodrogi, A. Csordás, J. Somlai, T. Kovács: **Intercomparison of calibrated CR-39 track thoron progeny detectors by active thoron devices under onsite circumstances**. The 9th International Symposium on the Natural Radiation Environment (NREIX), Hirosaki, Japán, 2014. szeptember 22-26.
4. A. Csordás, F. Fábíán, J. Somlai, T. Kovács: **Improvement of thoron calibration chamber at the Institute of Radiochemistry and Radioecology**

- of University of Pannonia.** The Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research (RAD 2014) and the Second East European Radon Symposium (SEERAS), University of Nis, Faculty of Electronic Engineering, p. 61, ISBN: 978-86-6125-100-9, 2014.
5. A. Csordás, F. Fábíán, M. Horváth, M. Hegedűs, J. Somlai, T. Kovács: **Preparation and characterization of ceramic based thoron sources for thoron calibration chamber.** The 9th International Symposium on the Natural Radiation Environment (NREIX), Hirosaki, Japán, 2014. szeptember 22-26.
  6. A. Csordás, F. Fábíán, A. Shahrokhi, J. Somlai, T. Kovács: **Calibration of CR-39 based thoron progeny device.** 7th International Conference on Protection Against Radon at Home and at Work, Prága, Csehország, ISBN: 978-80-01-05324-9, p. 46, 2013.
  7. F. Fábíán, A. Csordás, A. Shahrokhi, Y. Omori, J. Somlai, T. Kovács: **Intercomparison of thoron measuring devices in the RRI thoron calibration chamber.** VII. Hungarian Radon Forum and Radon in Environment Satellite Workshop, Veszprém, ISBN 978-615-5044-91-5, pp. 61-72, 2013.
  8. Csordás A., Fábíán F., Somlai J., Kovács T.: **Radon és toron mérő nyomdetektorok nemzetközi összemérésére való felkészülés és részvétel.** "Környezetbarát anyagok és technológiák" Konferencia és 56. Magyar Spektrokémiai Vándorgyűlés, Veszprém, 2013. július 1-3.
  9. Fábíán F., Csordás A., Hegedűs M., Kovács T., Somlai J.: **Toronforrások készítése toron kalibrációs kamrához.** XIX. Őszi Radiokémiai Napok, Eger, ISBN: 978-963-9970-42-7, p. 118, 2013.

## Egyéb publikációk

### Cikkek

1. A. Shahrokhi, B. D. Burghela, F. Fábíán, T. Kovács: **New study on the correlation between carbon dioxide concentration in the environment and radon monitor devices.** Journal of Environmental Radioactivity 150, pp. 57-61, 2015. (IF: 2,310)

2. Bélafiné Bakó K., Fábián F., Nemestóthy N.: **Ionos folyadékokból előállított polimer membránok vizsgálata.** Membrántechnika és ipari biotechnológia 5, pp. 2-12, 2014.
3. T. Kovács, G. Szeiler, F. Fábián, R. Kardos, A. Gregoric, J. Vaupotic: **Systematic survey of natural radioactivity of soil in Slovenia.** Journal of Environmental Radioactivity 122, pp. 70-78, 2013. (IF: 2,310)
4. Fábián F.: **Szlovéniai talajminták radiológiai elemzése.** Bagoly Almanach, Pannon Egyetem, Mérnöki Kar, Limnológia Intézeti Tanszék alkalmi kiadó, ISBN 978-615-5044-17-5, pp. 21-29, 2011.

### Konferencia kiadványok

1. F. Fábián, J. Jónás, Z. Sas, J. Somlai, T. Kovács: **Radiological investigation of deposited oil sludge in Hungary.** EU-NORM 2 Symposium, Prága, Csehország, 2014. június 17-19.
2. J. Somlai, Z. Sas, G. Szeiler, F. Fábián, T. Kovács: **Radiological survey of bottom ash inbuilt schools and kindergartens.** The Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research (RAD 2014) and the Second East European Radon Symposium (SEERAS), University of Nis, Faculty of Electronic Engineering, p. 61, ISBN: 978-86-6125-100-9, 2014.
3. B. D. Burghelle, F. Fábián, A. Shahrokhi, D. Lane-Smith, K. W. W. Sims, T. Kovács: **Radon measurements in a CO2 controlled environment.** VII. Hungarian Radon Forum and Radon in Environment Satellite Workshop, Veszprém, 2013. május 15-16.
4. Jónás J., Somlai J., Sas Z., Várhegyi A., Kovács T., Szeiler G., Fábián F.: **Uránbánya rekultivációja során alkalmazott talaj fedőréteg vizsgálata, radon és leányelemeinek mérésével.** PhD Hallgatók Környezettudományi Konferenciája, Budapest, 2013. június 6.
5. F. Fábián, R. Kardos, A. Csordás, M. Horváth, T. Kovács: **Determination of uranium in human urine samples using alpha spectrometry: A preliminary study.** III. Földkérgi Radioizotópok a Környezetünkben Környezetvédelmi Konferencia, Veszprém, ISBN 978-615-5044-67-0, 2012.

6. A. Gregoric, I. Kobal, T. Kovács, G. Szeiler, F. Fábrián, R. Kardos, J. Vaupotic: **Natural radioactivity of Slovenian soils**. 11th International Workshop on the Geological Aspects of Radon Risk Mapping, Prague, Czech Geological Survey, RADON v.o.s., ISBN 978-80-7075-789-5, 116-125, 2012.
7. M. Horváth, A. Csordás, B. Máté, F. Fábrián, R. Kardos: **Po-210/Pb-210 equilibrium measurements in tobacco samples**. III. Terrestrial Radioisotopes in Environment: International Conference on Environmental Protection, Veszprém, Pannon Egyetemi Kiadó, ISBN 978-615-5044-67-0, pp. 149-152, 2012.
8. Fábrián F., Cserjési P., Bélafiné Bakó K.: **Újszerű polimerizált ionos folyadékmembránok előállítása**. Jedlik Ányos Tehetséggondozó Műhely, Veszprém, 2011. május 16.
9. F. Fábrián, Z. Sas, N. Kávási, G. Szeiler, J. Vaupotic, T. Kovács: **Preliminary radiological study of Slovenian soil samples**. II. Földkérgi Radioizotópok a Környezetünkben környezetvédelmi konferencia, Veszprém, Pannon Egyetemi Kiadó, ISBN 978 615 5044 05 2, pp. 99-104, 2011.
10. Fábrián F.: **Szlovéniai talajminták radiológiai elemzése**. XXX. Jubileumi Országos Tudományos Diákköri Konferencia, Pécs, 2011. április 27-29.
11. Fábrián F.: **Szlovéniai talajminták radiológiai elemzése**. Intézményi Tudományos Diákköri Konferencia, Veszprém, 2010. november 10. (2. helyezés)

## KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Ezúton szeretném megköszönni a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézete valamennyi oktatójának és hallgatójának, hogy biztosították a szakmailag korrekt, ám mindig vidám légkört az ott töltött idő alatt.

Köszönet témavezetőmnek, *dr. Kovács Tibornak*, akitől mindig megkaptam a kellő szakmai támogatást, ezen felül az élet egyéb területeiről is kért (és sokszor kéretlen ☺) jótanácsokkal látott el.

Köszönet *dr. Somlai Jánosnak* és *dr. Németh Zoltánnak*, aiktől még környezetmérnök szakos egyetemi hallgatóként szívhattam magamba a tudást, de később, a doktori tanulmányaim során is bátran fordulhattam hozzájuk szakmai segítségért.

Köszönet PhD-s kollégáimnak és barátaimnak, *Borinak*, *Zolinak*, *Ricsinek*, *Jácintnak*, *Dávidnak*, *Anitának*, *Másinak*, *Gergőnek* és *Aminnak*, hogy ötleteikkel, javaslataikkal támogatták a munkámat, valamint hogy mindig nyitottak voltak egy jó beszélgetésre, és megismertették velem a vörösbor és a pálinka kombinációjának kedvező élettani hatásait. ☺

Köszönet a bírálóimnak, *Kávási Norbertnek*, *Szabó Katalin Zsuzsannának* és *dr. Somlai Jánosnak*, hogy észrevételeikkel segítettek, hogy ez az értekezés megszülethessen.

Ezen felül köszönet a *Családomnak*, valamint feleségemnek, *Zsuzsikának*, hogy töretlen lelkesedéssel támogattak.

Nélkületek ez nem jöhetett volna létre, köszönöm! ☺

Veszprém, 2017. július 26.

Feri