

DOKTORI (PHD) ÉRTEKEZÉS

**KÜLÖNBÖZŐ BEÁGYAZÓANYAGOK RADIONUKLIDOK
IMMOBILIZÁCIÓJÁT NÖVELŐ HATÁSÁNAK VIZSGÁLATA**

DOI:10.18136/PE.2023.859

Készítette:

Kocsis Erika

Kémiai és Környezettudományok Doktori Iskola

Témavezető:

Dr. Tóth-Bodrogi Edit

egyetemi docens

**Pannon Egyetem
Mérnöki Kar
Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék**



**Veszprém
2023**

KÜLÖNBÖZŐ BEÁGYAZÓANYAGOK RADIONUKLIDOK IMMOBILIZÁCIÓJÁT
NÖVELŐ HATÁSÁNAK VIZSGÁLATA

Az értekezés doktori (PhD) fokozat elnyerése érdekében készült a Pannon Egyetem
Kémiai és Környezettudományok Doktori Iskolája keretében

Kémiai tudományok tudományágban

Írta:
Kocsis Erika

Témavezető:
Dr. Tóth-Bodrogi Edit

Elfogadásra javaslom (igen / nem)

.....
(témavezető)

Az értekezést bírálóként elfogadásra javaslom:

Bíráló neve: igen /nem

.....
(bíráló)

Bíráló neve: igen /nem

.....
(bíráló)

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

Veszprém,

.....
(a Bíráló Bizottság elnöke)

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

Veszprém/Keszthely,

.....
(az EDHT elnöke)

Kivonat

A fenntartható fejlődés témakörében való gondolkodás a mindennapjaink részévé kell, hogy váljon. Ennek keretében igen fontos szegmens a minél kevesebb mennyiségű hulladék termelése, illetve a már meglévő hulladékok újra hasznosítása. Napjainkban szerte a világon találkozhatunk a különféle ipari folyamatok következtében keletkezett melléktermékekkel, hulladék anyagokkal, melyek további felhasználása egyáltalán nem, vagy csak kis mértékben valósul meg. Ezek mennyiségének csökkentése elsőrendű feladatunk. Azonban ezen anyagok nem mindegyike használható fel valamiféle korlátozás vagy átalakítás nélkül. Ennek egyik oka, hogy egyes ipari melléktermékben megfigyelhető a NORM (Naturally Occuring Radioactive Material) anyagok feldúsulása, melyek alkalmazása az elfogadhatónál nagyobb egészségkárosító kockázattal járhat a bennük található radionuklidok kioldódása/kikerülése következtében.

A NORM anyagok lehetséges felhasználási módjai igen szerteágazóak. Jelen dolgozat célja a NORM anyagok, mint adalékanyagok alkalmazásának vizsgálata az építőiparban, illetve egy speciális területen, a folyékony radioaktív hulladékok kondicionálása során.

A NORM anyagok építőiparban való alkalmazásának kutatása során vizsgálatra került az anyagok radionuklid tartalma, majd ezen paraméterek ismeretében a RESRAD-BUILD program segítségével meghatározásra került az az optimális anyagösszetételű NORM anyagokat is tartalmazó építőanyag-összetétel, amely a jelenlegi szabályozások mellett nem okoz többletdózist a lakosság számára.

A NORM anyagok kevésbé ismert felhasználási módja közé tartozik a folyékony radioaktív hulladékok kondicionálására való alkalmazás, mely során az alkalmazott NORM anyag felhasználásával geopolimereket állítunk elő. Bizonyos NORM anyagok, mint például a vörösiszap, kémiai összetételéből adódóan kiváló adalékanyagként szolgálhat a folyékony radioaktív hulladékokban található cézium-ionok immobilizációjának növelésére.

Mindezen alkalmazási formák vizsgálatának célja, hogy a már meglévő és a jövőben keletkező esetlegesen NORM anyagokat tartalmazó ipari hulladékok mennyisége csökkenjen a hulladékok újrafelhasználása következtében.

A Jelölt a dolgozat célkitűzését teljesítve, részletesen megvizsgálta és megállapításokat tett a különféle radionuklidok immobilizációját növelő tényezőkkel kapcsolatban.

Abstract

Sustainable development has become part of our everyday lives, and a very important part of this is the production of as little waste as possible and the recycling of existing waste. All over the world, we encounter by-products and waste materials from various industrial processes that have little or no potential for reuse. Unfortunately, not all of these materials can be used without some kind of restriction or modification. One of the reasons for this is that all industrial by-products show an accumulation of NORM substances, the use of which may pose an unacceptable risk to health due to the dissolution/leakage of the radionuclides they contain. These materials must therefore be handled and used with due care. The possible uses of NORM materials are very diverse. The purpose of this thesis is to investigate the use of NORM materials as additives in the construction industry and during the conditioning of liquid radioactive waste.

As part of the study of the use of NORM materials in the construction industry, the radionuclide content of the materials was examined and, with the help of the RESRAD-BUILD programme, the building material with the optimum composition of NORM materials was determined, which, in addition to the current regulations, does not cause any additional dose to the population.

One of the lesser-known uses of NORM materials is in the conditioning of liquid radioactive waste, where geopolymers are produced from the NORM material used. Due to the chemical composition of certain NORM materials, such as red mud, it serves as an excellent additive to increase the immobilisation of Cs ions in liquid radioactive waste.

The aim of the study of all these forms of application is the reduction of the amount of industrial waste that is already in existence and may be generated in the future, possibly containing NORM materials, as a result of the re-use of the waste.

The candidate has achieved the objective of the work, and has investigated in detail and made statements about the factors that increase the immobilisation of different radionuclides.

Abstract

Dezvoltarea durabilă a devenit parte a vieții noastre de zi cu zi, una dintre segmentele foarte importante acestuia este producerea cât mai puțină a deșeurilor și reciclarea deșeurilor existente. Peste tot în lume, putem întâlni produse secundare și deșeurile create ca urmare a diferitelor procese industriale, a căror utilizare ulterioară nu este realizată deloc sau doar într-o mică măsură. Cu toate acestea, din păcate, nu toate aceste materiale pot fi utilizate fără un fel de restricție sau modificare. Unul dintre motivele pentru care aceste materiale nu pot fi utilizate fără restricții este îmbogățirea substanțelor NORM, a căror utilizare poate implica un risc pentru sănătate mai mare decât acceptabil, datorită dizolvării/exhalării acestor radionuclizi. Prin urmare, aceste materiale trebuie transformate și utilizate cu atenție.

Posibilele utilizări ale acestor materiale NORM sunt foarte diverse. Scopul acestei teze este de a investiga utilizarea materialelor NORM ca aditivi în industria construcțiilor și în condiționarea deșeurilor radioactive lichide.

În cadrul examinării utilizării materialelor NORM în industria construcțiilor s-a examinat conținutul de radionuclizi al materialelor, iar cu ajutorul programului RESRAD-BUILD s-a determinat o compoziție optimă a materialelor NORM, care lângă reglementările actuale, nu provoacă o doză suplimentară populației.

Printre utilizările mai puțin cunoscute ale materialelor NORM se numără aplicarea lor în condiționarea deșeurilor radioactive lichide, în urma căreia geopolymerii sunt produși folosind materiale NORM. Datorită compoziției chimice a anumitor materiale NORM, cum ar fi noroiul roșu, acesta este un aditiv excelent pentru a crește imobilizarea ionilor de Cs în deșeurile radioactive lichide.

Scopul examinării acestor materiale este reducerea cantității de deșeurile industriale care există deja și care pot fi generate în viitor.

Candidatul a îndeplinit obiectivul tezei, a examinat în detaliu și a făcut constatări cu privire la factorii care cresc imobilizarea diversilor radionuclizi, care sunt prezenți în materialele NORM.

Tartalomjegyzék

Kivonat.....	4
Abstact	5
Abstract.....	6
Tartalomjegyzék	7
Bevezetés és célkitűzés	10
Irodalmi áttekintés	12
1. Sugárzások forrásai.....	12
1.1. Természetes háttérsugárzás	12
1.1.1. Kozmikus sugárzás	13
1.1.2. Földkérgi eredetű (terresztriális) sugárterhelés.....	13
1.2. Mesterséges forrásokból származó sugárterhelés	13
2. A sugárzások biológiai hatásai.....	14
2.1. Dózismennyiségek.....	14
2.1.1. Belső sugárterhelés becslése.....	16
2.1.2. Külső sugárterhelés becslése	17
2.2. Ionizáló sugárzás hatása az élővilágra.....	17
2.2.1. Determinisztikus hatás.....	18
2.2.2. Sztochasztikus hatás	18
3. Természetes radionuklidokat tartalmazó anyagok.....	19
3.1. NORM anyagok tárolási, valamint felhasználási módjai	21
3.2. NORM anyagok alkalmazása építőanyagként.....	23
3.3. NORM anyagok alkalmazása folyékony radioaktív hulladékok geopolimerekbe való beágyazása során	26
4. Radioaktív hulladékok	28
4.1. Nemzetközi radioaktív hulladék kategóriák	29
4.2. Hazai jogszabályozás.....	30

4.3.	Radioaktív hulladékok keletkezése és kezelése.....	31
4.3.1.	Radioaktív hulladékok keletkezése	31
4.3.2.	Radioaktív hulladékok kezelése	34
4.4.	Radionuklidok migrációs tulajdonságai a környezetben.....	36
5.	Radioaktív sugárzások mérése	38
5.1.	Gamma-sugárzó radionuklidok aktivitáskoncentrációjának meghatározása... 38	
5.2.	Radon aktivitáskoncentráció meghatározása.....	41
5.3.	Sugárterhelés becslése számítógépes szimulációval (RESRAD-BUILD modellező program).....	44
6.	Alkalmazott anyagok bemutatása	46
Kísérleti rész		51
7.	NORM anyagok építőiparban való alkalmazhatóságának vizsgálata.....	51
7.1.	Kémiai és ásványi anyagösszetétel meghatározása	51
7.2.	Gamma-spektrometria	52
7.2.1.	Mintaelőkészítés	53
7.2.2.	Kiértékelés menete	53
7.3.	Radonemanáció és -exhaláció meghatározása.....	55
7.3.1.	Mintaelőkészítés	55
7.3.2.	Kiértékelés menete	56
7.4.	Építőanyagok minősítésének meghatározása	57
7.4.1.	Mintaelőkészítés	59
7.5.	Sugárterhelés becslése RESRAD-BUILD szimulációs program segítségével	59
8.	Radioaktív hulladékok beágyazásának vizsgálata	60
8.1.	Mintaelőkészítés	60
8.2.	Kioldódásvizsgálatok.....	62
8.2.1.	Félvezető detektoros gamma-spektrometria.....	63
Eredmények és következtetések		66

9. NORM anyagok építőiparban való alkalmazhatósága.....	66
9.1. Gamma-spektrometriai eredmények.....	66
9.2. Radonemanáció és -exhaláció eredmények.....	69
9.3. I-index és építőanyag minősítés meghatározás eredményei.....	70
9.4. RESRAD-BUILD modellezés eredményei	72
9.4.1. Változó falvastagság és a többletdózis közötti összefüggések vizsgálata	72
9.4.2. Változó szobaméret és a többletdózis közötti összefüggések vizsgálata	74
10. Radioaktív hulladékok beágyazásának vizsgálata	77
10.1. I. vizsgálatsorozat eredményei	77
10.2. II. vizsgálatsorozat eredményei	79
10.3. III. vizsgálatsorozat eredményei.....	80
Összefoglalás	83
Tézispontok.....	85
Thesises.....	88
Irodalomjegyzék	90
Publikációs tevékenység.....	102
Köszönetnyilvánítás.....	106

Bevezetés és célkitűzés

Napjainkban a fenntartható fejlődés gondolata egyre nagyobb figyelmet kap, leginkább a folyamatosan csökkenő ipari nyersanyagok mennyisége iránti igény, valamint az ipari tevékenységek során kibocsátott nagy tömegű szennyező anyag egyre növekvő káros és visszafordíthatatlan hatása miatt, amely jelentősen befolyásolja az élővilág különböző folyamatait. Ezen hatások csökkentése érdekében az iparban egyre nagyobb igény mutatkozik az olyan technológiák iránt, amelyek hulladékmentesek lehetnek azáltal, hogy az ipari folyamatok során keletkezett ipari melléktermékeket újra felhasználják vagy ártalmatlanítják. Azonban nem minden ipari melléktermék újrafelhasználása biztonságos. Vannak olyan ipari eredetű hulladékok, amelyekben megfigyelhető a NORM (Naturally Occurring Radioactive Materials) anyagok, azaz a természetes eredetű radionuklidok feldúsulása, ez okból pedig ezen anyagok alkalmazása sugárveszélyességi szempontból korlátozott lehet. [1]

A NORM anyagok felhasználásának módjai közé sorolhatjuk azok építőipari alkalmazhatóságát, melynek során a jelenleg alkalmazott hagyományos alapanyagok kiválthatók, vagy legalább is csökkenthetik azok felhasznált mennyiségét. Mindemellett egyre nagyobb figyelmet kap a NORM anyagok különféle geopolimerek adalékanyagaként való alkalmazhatóságának vizsgálata a folyékony radioaktív hulladékok kezelése során,

Az építőiparban való alkalmazhatóságuk vizsgálatakor a fizikai-kémiai paraméterek vizsgálata mellett figyelembe kell venni sugárvédelmi szempontokat is, biztosítani kell a lakosságot arról, hogy a NORM anyagok megfelelő felhasználása biztonságos [2-9].

Az embert érő természetes eredetű sugárterhelés egy igen jelentős részéért az építőipari alapanyagokból származó sugárterhelés felel. Az UNSCEAR 2008-as jelentése alapján a lakosságot érintő természetes eredetű háttérsugárzás 2,4 mSv/év, amelyből 0,041 mSv/év teresztriális eredetű külső gamma dóziszból származik [9]. A lakosságot érő természetes sugárterhelés szempontjából figyelembe kell venni az építőanyagokból kiexhalálódó radon mennyiségét, amely zárt terekben való akkumulációja során képes kiváltani egészségkárosító hatását. Számos kutatás bebizonyította, hogy az így akkumulálódott jelentős mértékű radon megnövelheti a kialakuló tüdőrák kialakulásának kockázatát, emiatt ennek vizsgálata egészségügyi szempontból kiemelkedő fontossággal bír [10-12].

A NORM anyagok újrahasznosításának egy kevésbé ismert formája a radioaktív hulladékok lerakásánál való hasznosítás lehetősége. Bizonyos NORM anyagok szerkezetüket tekintve alkalmasak lehetnek különböző radionuklidok immobilizációjára, ezáltal megakadályozva azok környezetbe való kikerülését. Ilyen alkalmazási lehetőség lenne például a folyékony radioaktív hulladékok kondicionálása során beágyazóanyagként való alkalmazásuk is. Alkalmazásukkal plusz környezeti teher nélkül, megoldhatóvá válhatna két hulladékforma kezelése, ártalmatlanítása, természetesen a radioaktív hulladékok tárolására vonatkozó biztonsági elvárások figyelembevétele mellett.

Napjainkban a folyékony radioaktív hulladékok kezelési módszerei közül az egyik legtöbb figyelmet kapó kezelési módszer a geopolimerekbe történő beágyazás. A technológia előnye, hogy a keletkezett végtermék stabil, nem gyúlékony, viszonylag olcsó és kisebb a végtermék térfogatnövekedése a hagyományosnak tekinthető cementezéssel szemben.

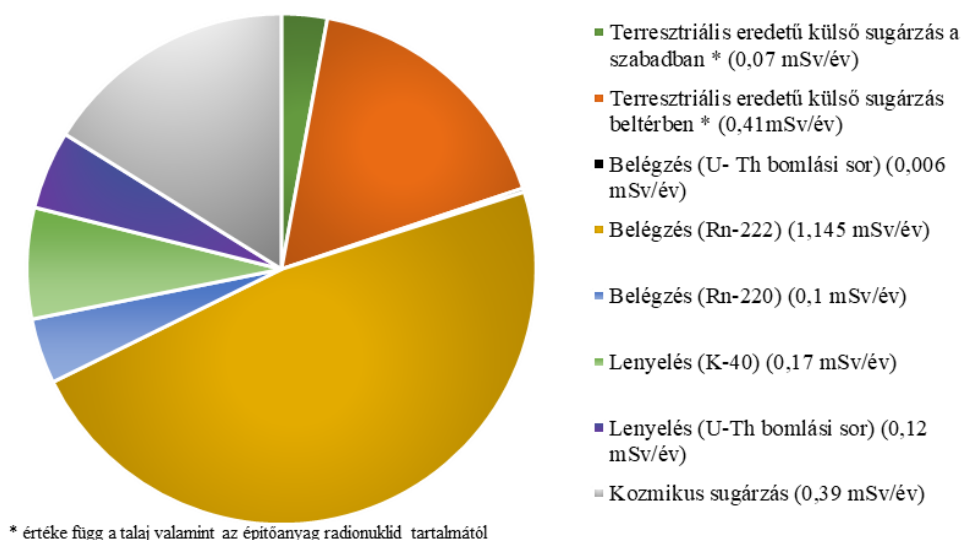
Dolgozatom célja a különféle NORM anyagok mind építőiparban, mind pedig a folyékony radioaktív hulladékok kezelésére való alkalmazhatóságának vizsgálata sugárvédelmi szempontból. Célom volt, hogy a rendelkezésemre álló anyagok és eszközök alkalmazásával megtaláljam azon optimális keverékeket, amelyek megfelelnek az adott felhasználási terület kritériumainak.

Irodalmi áttekintés

1. Sugárzások forrásai

1.1. Természetes háttérsugárzás

A lakosságot érintő sugárterhelés jelentős része természetes forrásokból származik. A háttérsugárzásból eredő sugárterhelés külső, illetve belső dózisból tevődik össze. A külső dózist tekintve a gamma-sugárzás, míg a belső dózis esetében a szervezetbe bekerült alfa- és béta-sugárzó radionuklidok által okozott többlet sugárterhelésről beszélhetünk. A háttérsugárzás mértéke a Föld különböző pontjain eltérő értékeket mutat. Magyarországon a lakosságot érő háttérsugárzásból adódó sugárterhelés mértéke 3,1 mSv/év, míg a népességgel súlyozott világátlag 2,4 mSv/év [13]. Az egyes összetevők közötti megoszlás az 1. ábrán látható, az összetevőkről bővebb információval a következő alfejezetek szolgálnak.



1. ábra: Lakosságot érintő természetes háttérsugárzás megoszlása [13]

Az ICRP (International Commission on Radiation Protection - Nemzetközi Sugárvédelmi Bizottság) legújabb ajánlása alapján a radontól származó dózis világátlaga 1,86 mSv/év, ez felelős a természetes háttérsugárzásból adódó sugárterhelés több mint 40%-ért [14].

1.1.1. Kozmikus sugárzás

A kozmikus sugárzás a Földön kívülről származó, nagy energiával rendelkező részecskék alkotta sugárzás. Eredetük alapján megkülönböztetünk galaktikus és szoláris kozmikus sugárzást. A légkörbe belépő kozmikus sugárzás kapcsolatba kerül az ott lévő atomokkal, molekulákkal és magreakciók révén kozmogén radionuklidokat hoz létre. Ezek közül a legfontosabbak a H-3, C-14 és Be-7. A kozmogén radionuklidok részt vesznek a Földön zajló folyamatokban, és beépülhetnek az élő szervezetekbe, így az emberbe is [13, 15].

1.1.2. Földkérgi eredetű (terresztriális) sugárterhelés

A földkérgi eredetű radionuklidok eltérő mennyiségben és formában egyaránt megtalálhatóak a környezeti elemekben, valamint az élő szervezetekben, Ezen izotópokra általánosan jellemző, hogy felezési idejük összemérhető a Föld korával és a környezetben ezek bomlástermékeit is megtalálhatjuk. A külső sugárterhelés jelentős része a gamma-sugárzó radionuklidokból ered, melyeknek a legjelentősebb környezeti forrása a talaj.

A talaj mellett az építőanyagok is tartalmazhatnak akár igen jelentős mennyiségben is - természetes radionuklidokat. Ennek következtében a szabadban és az épületekben mérhető gamma-dózisteljesítmények mértékei eltérőek lehetnek. A szabadban mért gamma-dózisteljesítmény világátlag értéke 58 nGy/h, míg az épületekben mért gamma-dózisteljesítmény világátlag értéke 84 nGy/h [13, 15].

A terresztriális radionuklidok lenyelés, belélegzés, bőrön keresztüli felszívódás következtében bekerülhetnek a szervezetbe is. A belélegzett izotópok közül a legjelentősebb a radon, valamint annak bomlástermékei. Emellett a legfontosabb radionuklidok közé soroljuk még az élelmiszerekben és ivóvízben megtalálható K-40, Ra-226 és U-238 izotópokat is [13, 15-16].

1.2. Mesterséges forrásokból származó sugárterhelés

A természetes sugárzások mellett az emberi szervezetet antropogén eredetű sugárzások is érhetik, melyek mesterségesen előállított izotópokból származnak. Ezeket alkalmazzák a gyógyászatban, mint például röntgen, CT, sugárterápia esetében, valamint az iparban, kutatás-fejlesztésben és energiatermelésben, de mindezen békés célú felhasználások

mellett a hadászati tevékenységekből, illetve a balesetektől származó mesterséges sugárterheléssel is számolni kell [15-16].

2. A sugárzások biológiai hatásai

2.1. Dózismennyiségek

A dózismennyiségek az ionizáló sugárzás károsító hatásainak kvantitatív jellemzésére szolgálnak. Az ionizáló sugárzások az emberi szervezettel fizikai szempontból ugyanúgy hatnak kölcsön, mint más anyagokkal (ionizáció, Compton-szórás, fotoeffektus, párkeltés, magreakciók). Az elsődleges fizikai hatást az élő szervezetben biokémiai változás követi. Leegyszerűsítve úgy értelmezhetjük, hogy az élő szervezetben elnyelődő sugárzás energiát közöl a bonyolult szerves molekulákkal, melyek kémiai kötéseiben szerkezeti változásokat okoz. Ezek a biokémiai változások felelősek a bekövetkező biológiai elváltozásokért. Mivel a biológiai károsítás folyamata rendkívül bonyolult, összetett folyamat, ezért többféle dózismennyiség használatos, melyek a következők:

Elyelt dózis: egységnyi tömegben elnyelt energia, független a sugárzás és az elnyelő anyag minőségétől. Jele a D, mértékegysége a J/kg [Gy].

$$D_{abs} = \frac{dE}{dm} \quad (2.1.1)$$

Ahol:

- E – abszorbeált energia (J/kg),
- m – tömeg (kg)

Egyenérték dózis: az adott sugárzásra jellemző minőségtényezőnek és a szövetben elnyelt dózissal a szorzata. Jele a H, mértékegysége a J/kg [Sv] [17].

$$H_{T,R} = w_R \cdot D_{T,R} \quad (2.1.2)$$

Ahol:

- w_R – a sugárzásra jellemző tényező,
- $D_{T,R}$ – a T szövetben elnyelt,
- R – sugárzásból származó elnyelt dózis [18].

Az egyes sugárzási típusokra vonatkozó sugárzási súlytényező értékei a 1. táblázatban láthatóak.

1. táblázat: Egyenértékdózis meghatározásához szükséges súlytényezők [19]

Sugárzás fajtája és energiája	Sugárzási súlytényező
Fotonok	1
Elektronok	1
Protonok	2
Alfa-részecskék, hasadási termékek, nehéz magok	20
Neutronok	[<1 MeV]: $2,5 + 18,2 e^{-[\ln(En)]2/6}$ [1-50 MeV]: $5,0 + 17,0 e^{-[\ln(2En)]2/6}$ [>50 MeV]: $2,5 + 3,25 e^{-[\ln(0,04En)]2/6}$

Effektív dózis: A különböző szöveteket ért káros sugárzás, és ennek következtében a szövetek károsodása nem azonos mértékben járul hozzá a szervezet károsodásához. Az effektív dózis a súlyozott összege a különböző szövetek egyenérték dózisának. Jele: E, mértékegysége J/kg [Sv] [20].

$$E = \sum_T w_T \cdot H_T \quad (2.1.3)$$

Ahol:

- w_T – a T testszövetre jellemző szöveti súlytényező.

2. táblázat: Az effektív dózis megállapításához használt súlytényezők, melyeknek összegük [19]

Szöveti súlytényező	Testszövet
0,12	Csontvelő
0,12	Vastagbél
0,12	Tüdő
0,12	Gyomor
0,12	Emlő
0,12	Egyéb *
0,08	Ivarmirigyek
0,04	Hólyag
0,04	Nyelőcső
0,04	Máj
0,04	Pajzsmirigy
0,01	Csontfelszín
0,01	Agy
0,01	Nyálmirigyek
0,01	Bőr

2.1.1. Belső sugárterhelés becslése

A szervezetbe bekerülő radionuklidok káros hatásának becslésére figyelembe kell venni a bejutási útvonalat (belégzés, lenyelés), az adott radionuklid koncentrációját és a dóziskonverziós tényezőjét

A lenyelésből eredő sugárterhelés az alábbi összefüggés segítségével számolható:

$$E_l = K_l \cdot G \cdot c \cdot \tau \quad (2.1.1.1)$$

Ahol:

- E_l – az effektív dózist jelenti,
- G – fogyasztott élelmiszer mennyiség [kg/nap],
- K_l – lenyelési dózisegyüttható [Sv/Bq],
- C – az adott izotóp koncentrációja a táplálékban [Bq/kg],
- τ – fogyasztási időtartam [nap].

A belélegzéssel történő többletdózis meghatározását az alábbi egyenlet segítségével számolhatjuk ki:

$$E_h = K_h \cdot V \cdot c \cdot F \cdot \tau \quad (2.1.1.2)$$

Ahol:

- E_h – effektív dózis,
- K_h – belélegzési dózisegyüttható [Sv/Bq],
- V – légzésteljesítmény [m^3 /nap],
- C – izotóp koncentrációja [Bq/ m^3],
- F – a szabadban, valamint az épületekben tartózkodás idejének arányát, illetve az épületek árnyékoló hatását figyelembe vevő redukciós tényező, melynek értéke 0,1-0,8,
- τ – tartózkodási időtartam [nap] [17].

2.1.2. Külső sugárterhelés becslése

Külső sugárterhelés becslésekor leginkább a béta és gamma-sugárzó izotópok hatásait vesszük figyelembe, hiszen az alfa-sugárzás, rövid hatótávolságának köszönhetően, már maximum 10 cm levegőben elnyelődik.

Gamma-sugárzás esetén az effektív dózis, félvégtesen közelítéssel, valamint a talaj felszínétől egy méteres magasságban becsülhető meg.

$$E_f = K_f \cdot \tau \cdot F \cdot \phi \quad (10.3.0.1)$$

Ahol:

- K_f – felületi dózisegyüttható [(Sv/s)/(Bq/m²)],
- Φ – felületi szennyeződés (Bq/m²),
- τ – a tartózkodás időtartama,
- F – a szabadban, valamint az épületekben tartózkodás idejének arányát, illetve az épületek árnyékoló hatását figyelembe vevő redukciós tényező, melynek értéke 0,1-0,8 [17].

2.2. Ionizáló sugárzás hatása az élővilágra

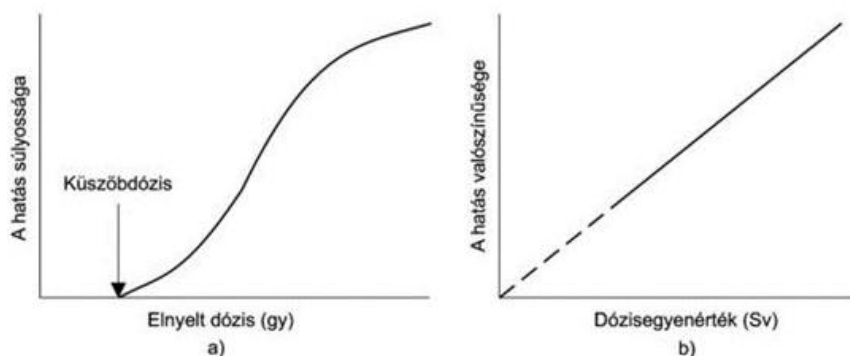
Ionizáló sugárzás hatására a molekulák szerkezete közvetve, valamint közvetlenül megváltozhat. Közvetlen hatásról beszélhetünk abban az esetben, ha az ionizáló sugárzás hatására a molekulák szerkezete megváltozik, szétbomlik és az új szerkezet fixálódik. Közvetett hatásról akkor beszélünk, amikor az elnyelt energia hatására úgynevezett szabadgyökök és más termékek képződnek, amelyek különböző kémiai reakciók által okoznak komoly károsodást a molekulák szerkezetében. Az egyes sejtek, valamint szervek különböző mértékben ellenállóak az ionizáló sugárzással szemben. Az emberi szervezet legérzékenyebb részei a nyirokrendszer, a csontvelő valamint az ivarszervek.

A szervezetet érő ionizáló sugárzások károsító hatását számos tényező befolyásolja, ilyen pl. az expozíció körülményei, valamint a szervek/szövetek eltérő biológiai érzékenysége. Mindezen tényezők megnehezítik a károsodás mértékének meghatározását [21].

Sugárvédelmi szempontból az ionizáló sugárzások biológiai hatását tekintve megkülönböztetünk sztochasztikus, valamint determinisztikus hatásokat.

2.2.1. Determinisztikus hatás

Determinisztikus hatás esetében egy úgynevezett küszöbdózis felett szinte biztosra vehető, hogy bekövetkezik egy egészségügyi károsító hatás, melynek mértéke a dózis növelésével fokozódik (2a. ábra) [22-23].



2. ábra: A determinisztikus (a) valamint a sztochasztikus (b) hatások jellemzői [24]

A kapott dózis következtében a tünetek rövid időn belül, néhány órán vagy néhány napon belül jelentkezhetnek. Ezek lehetnek hányás, hasmenés, szédülés, vagy akár halál.

Az 500 mSv fölötti kapott dózis esetében beszélhetünk maradandó determinisztikus hatásról, átmeneti sterilitás pedig akár már 150 mSv feletti dózis esetén jelentkezhet [25-26].

2.2.2. Sztochasztikus hatás

Sztochasztikus hatás esetén a károsodás bekövetkezése, bizonyos valószínűségi elemzések segítségével írható le. A károsító hatás nem következik be biztosan, de a sugárterhelés folyamatos növelésével a káros hatás bekövetkezésének valószínűsége is megnövekszik. Ebben az esetben nem beszélhetünk egy meghatározott küszöbdózis értékről (2b. ábra) [27-28].

A tünetek diagnosztizálását, valamint azok további kezelését nagymértékben megnehezíti az a tény, hogy az expozíciót követően a tünetek csak későn, akár évtizedek múlva jelennek meg, illetve egyes szervek, szövetek eltérő érzékenységet mutatnak bizonyos környezeti tényezőkre. A bekövetkezett hatások leggyakoribb megjelenési formája a daganatos megbetegedések és az átörökített genetikai rendellenességek okozta betegségek [29].

3. Természetes radionuklidokat tartalmazó anyagok

Ipari tevékenységek következtében elkerülhetetlen, hogy különböző mennyiségű és minőségű hulladékok keletkezzenek. Sokan nem gondolnák, de azon anyagok, amelyek a földkéregből kerülnek ki, mint nyersanyag, jelentős mennyiségben tartalmaznak különféle radionuklidokat, melyek mind a végtermékben, mind pedig a termelési folyamat közben keletkező melléktermékekben/hulladékokban is megjelennek. Ilyenek például a bányászat következtében kitermelt meddő, vagy az ércfeldolgozás következtében visszamaradó zagy. A különböző kezelések során alkalmazott fizikai és/vagy kémiai hatások jelentősen megváltoztathatják az anyagok szerkezetét, megváltozhat egyes radionuklidok mobilizációja, ily módon egyes frakciókban a különböző radionuklidok feldúsulhatnak. Ezen anyagok nagy általánosságban tárolásra kerülnek különféle meddő-, illetve zagy tározókban.

Napjainkban számos kutatás foglalkozik, az ilyen jellegű anyagok ártalmatlanítási vagy épp felhasználási lehetőségeinek vizsgálatával.

NORM anyagnak nevezünk minden olyan anyagot, amely természetesen előforduló radionuklidokban gazdag, úgymint az U-238, a Th-232, valamint a K-40 [30]. Az IAEA-1712 Report alapján a NORM anyagokban található radionuklidokra vonatkozó határértékek, amely alatt nem szükséges szabályozni ezen anyagok felhasználhatóságát, a következők: U-238 esetében 1 Bq/g, a Th-232, illetve a K-40 esetében a 10 Bq/g. Bizonyos ipari tevékenységek során keletkező NORM anyagok sugárvédelmi szempontból kiemelt figyelmet kapnak, hiszen az ipari tevékenységek során feldúsulhatnak a terasztriális eredetű radionuklidok, melyek koncentrációja megközelítheti vagy akár meg is haladhatja a NORM anyagokra vonatkozó határértékeket [9, 31].

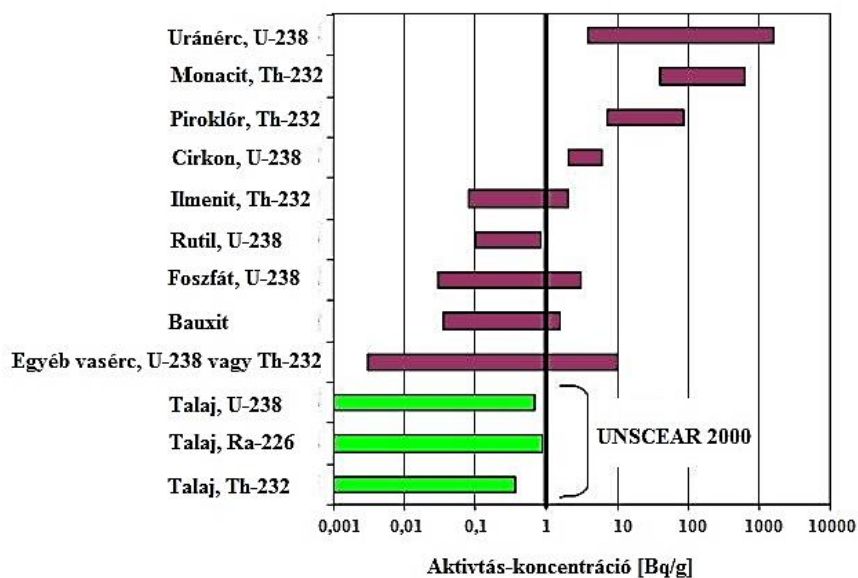
Sugárveszélyességi szempontból az IAEA az alábbi 11 ipari tevékenység melléktermékeit, illetve hulladékait tekinti potenciálisan veszélyesnek a jellemzően elért aktivitáskoncentrációk alapján (3. táblázat) [32-33]. A sugárvédelmi szempontból figyelmet igénylő ipari tevékenységek listája beintegrálásra került a hazai jogszabályi rendszerbe is, a hazai 2/2022 (IV. 29) OAH rendelet részeként [19].

3. táblázat: Sugárveszélyességi szempontból kiemelkedő figyelmet igénylő iparágak [19, 32-33]

Ipai tevékenység	Jellemző radionuklidok	Átlagos aktivitás-koncentráció [Bq/g]
Ritka földfémek bányászata	Ra-228	10
	Th-232	
Tórium és vegyületeinek előállítása és felhasználása	Th-232	20
Nióbium és ferro-nióbium előállítása	Th-232	100
	Po-210	100-500
	Pb-210	5
	Ra-226	
	U-238	300
Uránérc bányászat	U-238	10
Olaj- és gáz kitermelés	Pb-210	1000
	Ra-228	15000
	Ra-226	
	U-238	<2
Titán-dioxid pigmentek gyártása	Th-232	1-1600
	Ra-226	
	Ra-228	
	U-238	
Foszfátipar	Th-232	<3
A cirkón és a cirkónium-oxid ipar	U-238	2-4
	Po-210	200-600
	U-238	1-200
Ón, réz, alumínium, cink, ólom, vas és acél gyártása	Po-210	
Szénégetés	Po-210	> 100
	Th-232	
Vízkezelés	Ra-226	10

A különböző NORM anyagokban található fajlagos aktivitáskoncentrációja néhány Bq/kg-tól a több MBq/kg-os értékek között mozog. Mindazon anyagok, melyekben radionuklidok aktivitáskoncentrációja a fent említett értékek alatt található, nem tekinthetők NORM anyagoknak. Ez azonban nem jelenti azt, hogy ezen anyagok sugárvédelmi szempontból elhanyagolhatók lennének. A 3. ábrán láthatjuk néhány természetben előforduló anyagra jellemző aktivitáskoncentráció értéket, melyek alapján valóban nem tekinthetők NORM anyagoknak, azonban radionuklid tartalmuk alapján, sugárvédelmi szempontból figyelmet igényelnek, hiszen alkalmazási területüktől függően kockázatot jelentenek.

Összehasonlításuképpen az ábra alján zöld jelöléssel láthatjuk az UNSCEAR által meghatározott a talajokra jellemző, radionuklid specifikus aktivitáskoncentráció értékeket [9-34].



3. ábra: Néhány természetes anyag radionuklidra jellemző aktivitáskoncentráció értékek [34]

3.1. *NORM* anyagok tárolási, valamint felhasználási módjai

Napjainkban a *NORM* anyagok leggyakrabban alkalmazott kezelési módja a végleges tárolóban való elhelyezés, mint például hazánkban az Ajkai timföldgyár mellett található vörösiszap tároló. Ezen kezelési módszer, a környezetre, valamint az emberre is kockázatot jelent. Amennyiben az adott iparág a *NORM* mellékterméket végleges tárolóba helyezi, számolnia kell különféle környezeti hatások kockázatával. Ilyen lehet a felszíni, valamint a felszín alatti vízforrások elszennyezése, amennyiben az adott tároló nincs megfelelően kialakítva/karbantartva. Mindamelllett, hogy ezek a tárolók rendkívül nagy helyigénnyel rendelkeznek, a nagy felületnek köszönhetően figyelembe kell venni a szilárd, legfőképpen a porózus halmazállapotban tárolt anyagok esetén a szél által okozott környezetszennyezés lehetőségét is. Amellett, hogy e tárolók környezetvédelmi szempontból is igen kedvezőtlenek, többletdózist jelenthetnek az ott dolgozók, valamint a közelben lakók számára. A többletdózis származhat a radionuklidok lenyeléséből, valamint belélegzéséből, illetve többletdózist jelent számukra a tároló közelében megnövekedett gamma-dózis is. Számos kutatás, köztük a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszéken végzett kutatások is bebizonyították, hogy a tároló közelében található

növények mind a talajból, mind pedig a levegőből akkumulálni képesek a különféle radionuklidokat, például a Po-210-et, amely alfa-sugárzó radionuklidként a szervezetbe kerülve jelentősen megnövelheti a belső sugárterhelés mértékét [35-37]. A NORM anyagok tárolását illetően még napjainkban sincs kialakult és egységes jogi szabályozás hazánkban. Sajnálatos módon világszerte számos katasztrófa következett már be a nem megfelelő módon történő tárolás és kezelés következtében. Ilyen a hazánkban 2010. október 4-én bekövetkezett ajkai vörösiszapkatasztrófa, ahol a nem megfelelő szabályozás, és emberi mulasztás következtében az ajkai timföldgyár területén található egyik vörösiszappal teli zagyatároló fala átszakadt, és a benne található folyékony halmazállapotú, maró vörösiszap massa elárasztotta a környező területeket, ahol felbecsülhetetlen károkat okozott (4.ábra) (a közeli felszíni, valamint felszín alatti vizek elszennyezése, a termőföldek, valamint közterületek, lakóházak elszennyezése).



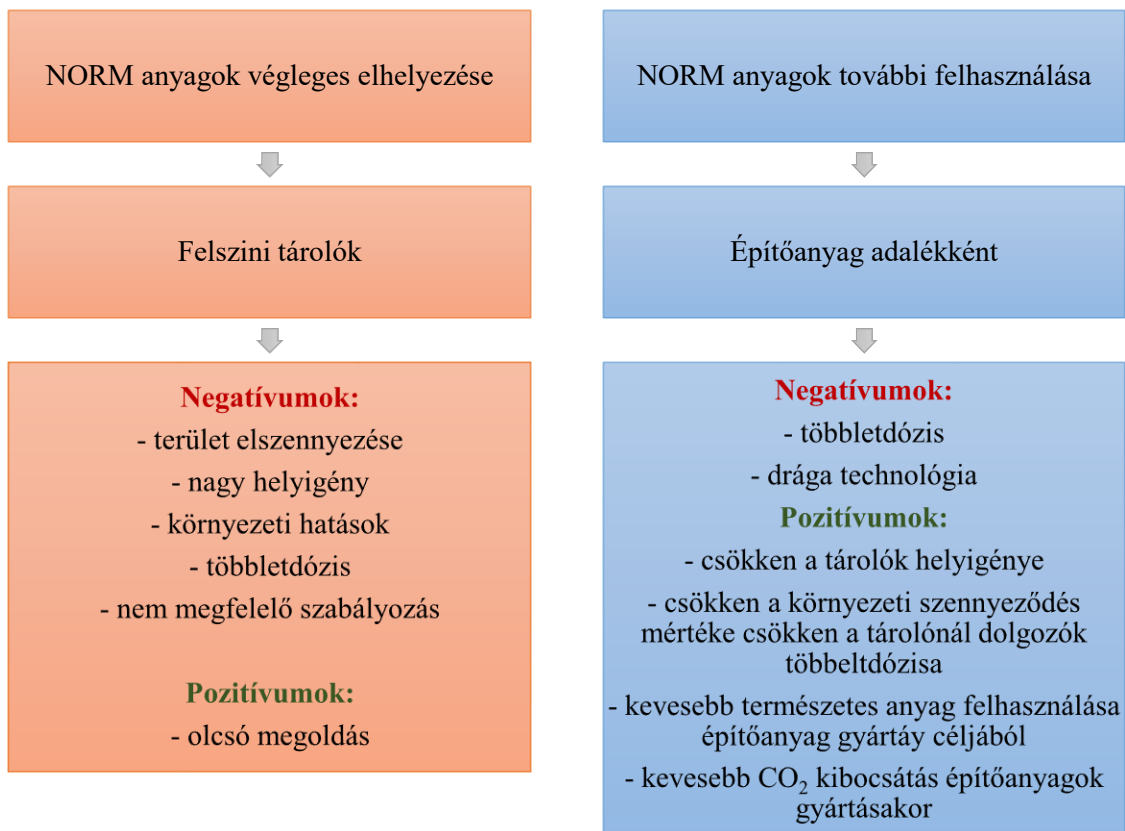
4. ábra: Ajkai vörösiszapkatasztrófa 2010. október 4.

3.2. *NORM anyagok alkalmazása építőanyagként*

Dolgozatom egyik témája a NORM anyagból készült építőanyagok vizsgálata. Az építőanyagok sugárvédelmi szempontból kettős szerepet töltenek be. Egyrészt bizonyos mértékben leárnyékolják és ez által csökkentik a kozmikus, valamint teresztriális forrásokból származó sugárterhelés mértékét, másrészt pedig az építőanyagok fajtájától függően kisebb-nagyobb mértékben hozzájárulhatnak az épületekben tartózkodók megnövekedett sugárterheléséhez.

Napjainkban egyre több kutatás foglalkozik a különféle ipari melléktermékek hasznosításának gondolatával. A különböző ipari melléktermékek felhasználása esetében minimalizálhatjuk a hulladéklerakók méretét, ezáltal csökkenthetjük a környezetszennyezés mértékét, azaz kevesebb nehézfém és/vagy radioaktív izotóp kerülhet ki a felszíni vagy felszín alatti vizekbe és a környező termőföldekre és mérsékelhető az ott tartózkodók külső, valamint belső sugárterhelése [5,32,38]. Az egyik legelterjedtebb felhasználási lehetőség, amelynek kutatása az elmúlt évtizedben kiemelkedő figyelmet kapott, a különféle ipari melléktermékek adalékanyagként való alkalmazása a hagyományos építőanyagokhoz [38-43].

Néhány hagyományos építőanyag gyártása során jelentős mennyiségű üvegházhatású gáz kerül kibocsátásra, például a Portland cement gyártása során nagy mennyiségű CO_2 , NO_2 , NO_3 , SO_2 , gáz kerül a légkörbe [39-40]. Ezen anyagok kiváltásával, illetve mennyiségük csökkentésével mérsékelhető a kibocsátott üvegházhatású gázok mennyisége is [40-41]. Elmondható, hogy az ipari melléktermékek, illetve hulladékok felhasználása az építőipar két környezetvédelmi szempontból jelentős problémájára is megoldást nyújthat.



5. ábra: NORM anyagok építőiparban történő felhasználási módjának jellemzése (saját ábra)

A felsorolt szempontok miatt napjainkban egyre több kutatás foglalkozik a NORM anyagok hasznosítási lehetőségeivel.

A lakosság, idejének 80%-át épületek beltereiben, otthon és/vagy munkahelyen tölti, ennek okán nyert teret az ilyen jellegű építőanyagok sugárvédelmi vizsgálatának jelentősége is. A jelentősebb arányban NORM anyagokat tartalmazó építőanyagok vagy gamma-sugárzással, vagy az építőanyagokból kiáramló radon szervezetbe jutásával járulhatnak hozzá a megnövekedett sugárterheléshez [19-46]. A megnövekedett gamma-dózist elsősorban az építőanyagokban található Ra-226, Th-232 és K-40 izotópok okozzák [44]. Az embert érő sugárterhelés több, mint feléért a radon és leányelemei a felelősek, ennek forrása az építőanyagok, valamint az épületek környezetében található talaj lehet [45,47-48]. Számos kutatás kimutatta, hogy a radon a dohányzást követően a második fő kiváltó oka a tüdőráknak, így a beltéri radon vizsgálata igen fontos [36]. A beltéri radon aktivitáskoncentráció nagymértékben függ az alkalmazott NORM anyag fajtájától és alkalmazott mennyiségétől. A radon által okozott többletdózist befolyásolja az anyag

szerkezete, mennyisége, a légnyomás, a páratartalom, az anyag porozitása, valamint a hőmérséklet. A tulajdonságokat figyelembe véve, azon NORM anyagokat, amelyek építkezés céljából szeretnénk felhasználni, radiológiai vizsgálatoknak kell alávetni [49].

NORM építőanyagok beépíthetőségének nemzetközi és hazai feltételei

A természetes háttérsugárzással és azok egészségre gyakorolt hatásával kapcsolatos kutatások és jogi szabályozások az elmúlt évtizedekben egyre nagyobb figyelmet kaptak. Számos nemzetközi szabályozás jelent meg az utóbbi időben a témával kapcsolatban. Ilyen a 2007-ben megjelent WHO által kiadott Handbook on Indoor Radon, valamint az ICRP Publication 103 és a 2014-ben IAEA által kiadott International Basic Safety Standards [50-53].

Az Európai Unióban 2013. december 5-én hatályba lépett 2013/59/EURATOM irányelv, magában foglalja az EU-BSS (Basic Safety Standards) legújabb építőanyagokra vonatkozó ajánlásait. Ezen ajánlások kiterjednek a gamma-sugárzó izotópokból származó sugárterhelésre és a radonból származó többletdózisra egyaránt. Az irányelvben meghatározott vonatkoztatási szinteket Magyarország beépítette saját jogszabály rendszerébe, ezt a jelenleg hatályos 2/2022 (IV. 29) OAH rendelet tartalmazza. A rendelet szerint a radon és a radon-leányelemek éves aktivitáskoncentrációja értelmében a vonatkoztatási szint 300 Bq/m^3 . A rendelet nem tesz különbséget lakóépület, középület, valamint munkahely között, mindegyikre egyaránt vonatkozik a 300 Bq/m^3 -es határérték. Amennyiben a radon aktivitáskoncentráció értéke meghaladja a 300 Bq/m^3 értéket, gondoskodni kell annak csökkentéséről a megengedett szintre [19].

Az OAH rendelet a radon aktivitáskoncentráció mellett az építőanyagokból származó gamma-sugárzással is foglalkozik, mely értelmében az építőanyagokból származó gamma-sugárzásból származó többletdózis nem haladhatja meg az 1 mSv/év értéket. Ez a feltétel akkor teljesül, ha az építőanyagokra vonatkozó I-index értéke kevesebb, mint 1. Az I-index értékét az alábbi egyenlet segítségével határozhatjuk meg [19]:

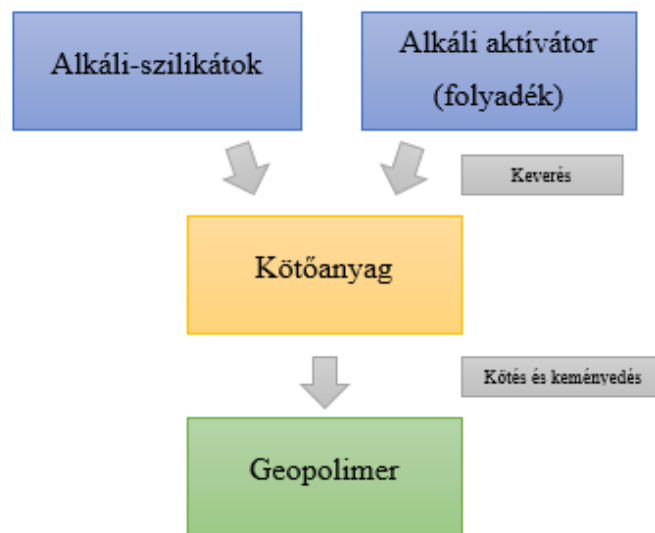
$$I = \frac{C_{Ra-226}}{300} + \frac{C_{Th-232}}{200} + \frac{C_{K-40}}{3000} \leq 1 \quad (1.1.1)$$

ahol:

C – a Ra-226, Th-232 valamint a K-40 aktivitáskoncentrációja [Bq/kg].

3.3. NORM anyagok alkalmazása folyékony radioaktív hulladékok geopolimerekbe való beágyazása során

A NORM anyagok alkalmazhatóságának vizsgálatában új terület még a folyékony radioaktív hulladékok geopolimerekbe történő beágyazása során adalékanyagként való felhasználásuk. A geopolimerek olyan szervesetlen polimer anyagok, melyek agyagásványok, valamint alkáli–szilikátok lúgos reakciójával állíthatók elő (6. ábra) [54].



6. ábra: Geopolimerek előállításának sematikus ábrázolása [54]

A geopolimerek előállítása energiahatékony, környezetbarát technológiának tekinthető. A végtermékek kiemelkedő mechanikai tulajdonságuk révén kiváló alternatív alapanyagként szolgálhatnak az építőipar számos területén, s napjainkban fokozott figyelmet kapnak a radioaktív hulladékkezelés területén is [55].

A geopolimer szintéziséhez egyre nagyobb mennyiségben alkalmaznak erőművi pernyét vagy salakot, melynek egyik oka a könnyű hozzáférhetőségük, illetve nagy mennyiségben rendelkezésre állásuk. Az így készült végtermékek kiváló idő-, sav-, hő- és tűzálló tulajdonságokkal rendelkeznek. Napjainkban az említett erőművi salak és pernye mellett még számos más ipari melléktermék alkalmazhatóságát is vizsgálják geopolimerek előállítása szempontjából. Ilyen ipari melléktermékek a különböző kohósalakok, üveghulladékok, vörösiszap vagy az építési hulladékok is [55].

A geopolimerek szintézis alapanyagául szolgálhatnak a különböző módon előállított metakaolinok, illetve a szilikát tartalmú hulladékok, amelyek lehetnek: bányászati meddő,

erőművi hulladék, kohászati salak, hulladékégetési melléktermék, illetve vörösiszap. A geopolimerek előállítása többlépéses folyamat, melynek első lépésében összekeverik az alumínium-szilikát port és a lúgoldatot. Ezt követi a melléktermékek hozzáadása. Végül alapos homogenizálás után a kapott massa formába önthető [56].

A folyékony radioaktív hulladékok geopolimerizációval történő szilárdítása során a kapott végtermék stabil szerkezettel, rendkívül jó hő és tűzálló képességekkel rendelkezik. A folyékony radioaktív hulladékok bórsav koncentrációja nem rontja a geopolimerek szerkezetét, valamint a keletkezett végtermék térfogata jelentősen kisebb a cementezéssel kondicionált hulladékok térfogatához képest [57].

A folyékony radioaktív hulladékok geopolimerekbe történő beágyazásának számos pozitív tulajdonsága mellett, természetesen akad hátrány is: újszerűségéből adódóan erről a módszerről jelenleg még viszonylag kevés hosszútávú tapasztalattal rendelkezünk.

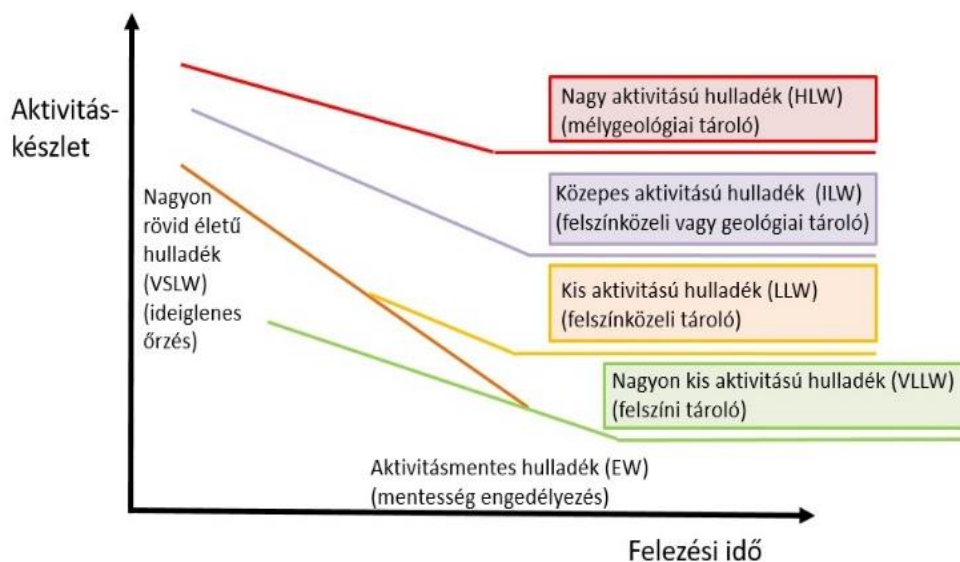
4. *Radioaktív hulladékok*

A radioaktív sugárzásokkal, radioaktív anyagokkal végzett tevékenységek során elkerülhetetlen a különféle radioaktív hulladékok keletkezése, amelyek kezeléséről, majd átmeneti- és végleges tárolásáról mindenképpen gondoskodni kell. Az *Atomenergiáról* szóló 1996. évi CXVI. törvény értelmében radioaktív hulladék meghatározása az alábbi: „további felhasználásra már nem kerülő olyan radioaktív anyag, amely sugárvédelmi jellemzők alapján nem kezelhető közönséges hulladékként”. A törvényben meghatározottak alapján, újrafelhasználhatósági tulajdonságai miatt nem tekinthető radioaktív hulladéknak a kiégett fűtőelem [58].

A radioaktív hulladékokat csoportosíthatjuk halmazállapot (szilárd, biológiai eredetű, folyékony és nem tűzveszélyes, folyékony és tűzveszélyes, valamint légnemű radioaktív hulladékok), hőfejlődés (kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok esetében a hőfejlődés mértéke a tárolás során elhanyagolható, míg nagy aktivitású hulladék esetében a tárolás során a hőfejlődés mértékét figyelembe kell venni), aktivitáskoncentráció (kis-, közepes- és nagy aktivitású radioaktív hulladékok), illetve a hulladékban található radionuklidok felezési ideje (rövid, közepes és hosszú felezési idejű radionuklidokat tartalmazó hulladékok) szerint.

4.1. Nemzetközi radioaktív hulladék kategóriák

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség a radioaktív hulladékokat hat külön kategóriába sorolja az aktivitáskoncentráció és felezési idő függvényében, ez látható a 7. ábrán.



7. ábra: Nemzetközi radioaktív hulladék kategóriák a felezési idő és aktivitáskoncentráció függvényében [59].

Az ajánlás alapján az alábbi radioaktív hulladék kategóriákat különböztetjük meg:

- EW – azaz, a mentességi szint alatti hulladékok kategóriája;
- VSLW – azaz a nagyon rövid élettartamú radioaktív hulladékok kategóriája, amelybe a csak nagyon rövid felezési idejű izotópokat tartalmazó radioaktív hulladékok tartoznak.
- VLLW – azaz a nagyon alacsony szintű radioaktív hulladékok kategóriája, amelybe a azon radioaktív hulladékok tartoznak, amelyekbe a radionuklidok aktivitáskoncentrációja kis mértékben haladja meg a felszabadítási szintet. Felszíni, vagy felszín közeli tárolókban biztonságosan elhelyezhetők.
- LLW – azaz a kis szintű radioaktív hulladékok kategóriája, amelybe azok a radioaktív hulladékok tartoznak, amelyek, normál kezelési és szállítási folyamatai során nincs szükség különösebb árnyékolásra.
- ILW – azaz a közepes szintű radioaktív hulladékok kategóriája. Az ilyen jellegű radioaktív hulladékok esetében, a bennük található hosszú felezési idejű izotópok miatt, kezelésük, szállításuk, valamint tárolásuk során, már szükség van különféle árnyékoló anyagok használatára.

- HLW – azaz a nagy szintű radioaktív hulladékok kategóriája, amelyekben már nagy koncentrációban találhatóak rövid és hosszú felezési idejű izotópok egyaránt. A hulladék tárolása közben, jelentős mennyiségű hő fejlődik [60-62].

4.2. Hazai jogszabályozás

A hazai radioaktív hulladékok csoportosítására és osztályozására vonatkozó jogi szabályozásokat a 2/2022. (IV. 29.) OAH rendelet 12. melléklete határozza meg [19].

- *Nagyon kis aktivitású radioaktív hulladékoknak nevezzük azokat a hulladékokat, amelyekben a 30 évnél nem hosszabb felezési idejű radionuklidok aktivitáskoncentrációja nem haladja meg a specifikus mentességi aktivitáskoncentráció (SMEAK) ötvenszeresét, valamint 30 évnél hosszabb felezési idejű radionuklidok aktivitáskoncentrációja nem nagyobb az általános mentességi aktivitás-koncentráció (ÁMEAK) értékénél.*
- *A kis- és közepes aktivitású radioaktív hulladék esetén a hőfejlődés mértéke az elhelyezés, valamint tárolás során elhanyagolható. A kis- és közepes aktivitású radioaktív hulladékok kategóriáján belül megkülönböztetjük a:*
 - *Rövid élettartamú kis- és közepes aktivitású radioaktív hulladékokat, amelyekben a radionuklidok meghatározó részének a felezési ideje 30 év, vagy annál kevesebb, és csak korlátozott mennyiségben tartalmaz hosszú felezési idejű alfa-sugárzó radionuklidokat.*
 - *Hosszú élettartamú kis- és közepes aktivitású radioaktív hulladékokat, amelyekben a radionuklidok felezési ideje és - vagy az alfa-sugárzó radionuklidok aktivitáskoncentrációja meghaladja a rövid élettartamú radioaktív hulladékokra vonatkozó határértékeit.*
- *A nagy aktivitású radioaktív hulladékok esetén figyelembe kell venni hőfejlődés mértékét a tárolás és elhelyezés során. Ebben az esetben a hőfejlődés mértéke meghaladja a 2 kW/m³-t.*

A radioaktív hulladék kis- és közepes aktivitású osztályba sorolása a bennük található radioizotóp aktivitáskoncentrációja és mentességi aktivitáskoncentrációja (MEAK) alapján történik. A MEAK szinteket a NAÜ IBSS 115 kiadványa alapján határozták meg a 2/2022. (IV. 29.) OAH rendelet 12. mellékletének 2. sz. táblázatában (4. táblázat).

4. táblázat: Kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok osztályozása mentességi aktivitási koncentráció alapján

Radioaktív hulladék osztály	Aktivitáskoncentráció [Bq/kg]	Aktivitáskoncentráció viszonyítás több izotóp jelenléte esetén
Kis aktivitású	$< 10^3$ SMEAK	$\sum_i \frac{AK_i}{SMEAK_i} \leq 10^3$
Közepes aktivitású	$> 10^3$ SMEAK	$\sum_i \frac{AK_i}{SMEAK_i} > 10^3$

Ahol,

- AK_i a radioaktív hulladékban előforduló i -edik izotóp aktivitás-koncentrációja [Bq/g],
- $SMEAK_i$ az i -edik izotóp speciális mentességi aktivitás-koncentrációja [Bq/g] [19].

4.3. Radioaktív hulladékok keletkezése és kezelése

4.3.1. Radioaktív hulladékok keletkezése

Nem atomerőművi eredetű radioaktív hulladékok

Radioaktív hulladékok keletkezésével a nukleáris üzemanyag-ciklusból eredő hulladékképződés mellett élet számos területén, mint például az anyagvizsgálatok során, a nedvesség, valamint szintmérések során, vagy gyógyszerek előállításakor, az egészségügyben alkalmazott izotópdiagnosztikai és terápiás alkalmazások esetében, illetve az oktató és kutató-fejlesztő munkák során is számolni kell [62].

A különféle alkalmazások esetén zárt és/vagy nyitott sugárforrásokat használnak.

Zárt sugárforrások esetében a legfontosabb kritérium, hogy a sugárforrás anyaga, semmilyen körülmények között ne kerüljön kapcsolatba a környezetével, tehát a sugárforrást egy mechanikailag ellenálló burkolat (tok) veszi körül. A tok anyagát, úgy kell megválasztani, hogy a sugárforrás által emittált és használni kívánt sugárzás azonban szabadon kiáramoljon.

A zárt radioaktív sugárforrásokat már évtizedek óta használják az ipar, a gyógyászat, a mezőgazdaság, illetve a kutatás számos területén. A leggyakrabban alkalmazott radioaktív

izotópok amelyek szinte minden területen alkalmazhatóak azok a Co-60, Ir-192, Am-241 illetve a Cs-137. Az alkalmazott sugárforrások aktivitása széles skálán mozog.

A már nem alkalmazott zárt sugárforrások - amennyiben már további alkalmazásra nem alkalmasak - radioaktív hulladéktárolókba kerülnek végleges elhelyezésre. Amennyiben a sugárforrás még használható, azt újratokozást követően továbbra is alkalmazzák [63].

Nyitott sugárforrások esetén a nem megfelelő kezelés során a környezet elszennyezése, valamint az inkorporáció lehetősége nagy, ugyanis ebben az esetben hiányzik a zárt sugárforrásoknál található mechanikailag ellenálló burkolat. A sugárforrásokat alkalmazásuk szerint meghatározzák annak fizikai, kémiai paramétereit majd ennek következtében besugározzák (reaktorban vagy ciklotronban) a céanyagot. A besugárzást követően a kapott anyagot alkalmazásra kész formába hozzák, azaz beállítják annak aktivitáskoncentrációját és csomagolják. Nyitott sugárforrásokat leginkább nyomjelzésteknikákhoz alkalmazzák, mind az iparban, mind pedig a gyógyászatban. A leggyakrabban alkalmazott izotópok az I-131, Tc-99m [64].

A nyitott sugárforrások alkalmazása során keletkezett radioaktív hulladékok mennyiségéről pontos nyilvántartást kell vezetni, megfelelően feliratozott és kialakított tározóban kell tárolni, addig amíg azok elszállításra nem kerülnek a számukra kialakított hulladéktárolókba [64].

Atomerőműben keletkező radioaktív hulladékok

Az atomerőmű üzemeltetése során keletkező radioaktív hulladékokat számos kategória alapján csoportosíthatjuk, de gyakorlati szempontból a legfontosabb kategorizálási mód a halmazállapotok szerinti csoportosítás.

Szilárd radioaktív hulladékok

Az atomerőművek üzemeltetése során keletkező szilárd halmazállapotú radioaktív hulladékok forrásai lehetnek az elhasználadott és felaktiválódott, vagy felületileg szennyezett berendezések, csővezetékek és használati eszközök, az átalakításokból származó építési anyagok, a karbantartás és üzemeltetés során keletkező hulladékok, mint például a védőruhák, védőfelszerelések, szűrőbetétek, törlőrongyok, műanyag fóliák, papír, illetve a gyöngykovafölddel felitatott iszapok.

A szilárd hulladékokat a keletkezési forrás mellett számos más szempont alapján csoportosíthatjuk még, mint pl. halmazállapot (szilárd, iszap), a gyűjtés módja (műanyagzsák, fémhordó), kezelés módja (tömörített, nem tömörített, iszap), valamint a méret (hordóba helyezhető, hordóba nem helyezhető) alapján történő csoportosítás.

A legnagyobb mennyiségben keletkező szilárd, tömöríthető radioaktív hulladékokat zsákokba helyezik, majd különféle technológiák segítségével (elsősorban tömörítés, illetve szükség szerinti aprítás) csökkentik azok térfogatát -200 literes speciális fémhordóba tömörítik. A kezelést követően a kis- és közepes aktivitású hulladékok az átmeneti tárolóba kerülnek, majd később átszállítják az Nemzeti Radioaktív Hulladék Tárolóba végleges elhelyezésre [63].

Folyékony radioaktív hulladékok

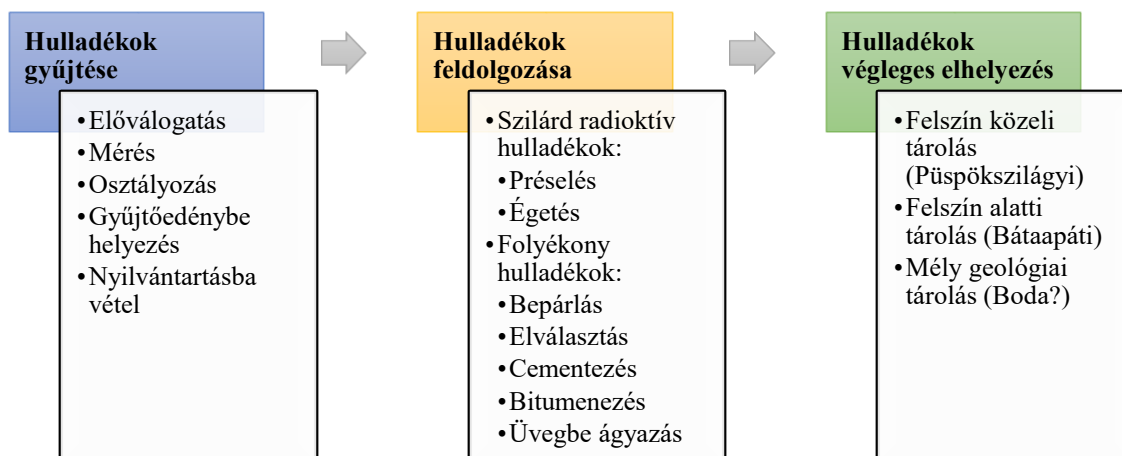
Az atomerőművek üzemelése során, az ellenőrzött zónákban radioaktív izotópokat tartalmazó vegyszeres hulladékvizek keletkeznek, radioaktív hulladéknak számítanak, így azok nem bocsáthatók ki egyből a közcsatornába [67].

A Paksi Atomerőműben keletkező folyékony radioaktív hulladékok fő forrásai a primerköri bórsavas hulladékvizek, a dekontaminációs folyamatok hulladékvizei, a primerköri víztisztítók regenerálási hulladékvizei, az elszennyeződött technológiai bórsavoldatok, a primerköri víztisztítók elhasznált ioncserélő gyantái, a berendezés dekontaminálásából származó vegyszeres hulladékvizek, az evaporáló savazó oldatok, a primerköri laboratóriumokból, mosodákból származó hulladékvizek, valamint a szennyezett zuhanyvizek, illetve a szennyezett szerves oldószerek és olajok.

A keletkezés forrása mellett az erőműben keletkező folyékony radioaktív hulladékokat csoportosíthatjuk aktivitásuk, a különböző adalékanyag tartalmuk, illetve vegyszertartalmuk alapján is [63-68].

4.3.2. Radioaktív hulladékok kezelése

Az atomerőművi és a nem atomerőművi radioaktív hulladékok különféle gyűjtési, kezelési, valamint elhelyezési módjait az alábbi sematikus ábra (8. ábra) foglalja össze:



8. ábra: Radioaktív hulladékok gyűjtésének, kezelésének és elhelyezésének módjai (saját ábra)

Az 1996. évi Atomtörvény meghatározza a radioaktív hulladékok kezelésének, szállításának, feldolgozásának, kondicionálásának, valamint az átmeneti és a végleges tárolásának módjait. A radioaktív hulladékok kezelése során törekedni kell a biztonságra és a gazdaságosságra, miközben a hulladék valamennyi jellemzőjét megváltoztatjuk. A hulladékok kezelésének célja, hogy olyan formába hozzuk őket, amelyben a tárolást biztonságosan, a sugárvédelmi előírásokat betartva meg tudjuk oldani [69]. A szilárd halmazállapotú hulladékok esetében cél annak térfogatának csökkentése és biztonságos elhelyezése. A folyékony radioaktív hulladékok szállítását, valamint elhelyezését megelőzően azokat megfelelő formába kell hozni, azaz szilárdítani kell. Erre számos különféle technológiát alkalmaznak, ilyen a cementbe, bitumenbe, polimerbe vagy üvegbe ágyazás.

Ezen technológiák célja, hogy a különféle folyékony hulladékokat, a szállítás, valamint az elhelyezés szempontjából biztonságosabb formába hozzuk, ezzel csökkentve a radionuklidok környezetbe való kijutásának valószínűségét. Az immobilizáció során a folyékony radioaktív hulladékokban található radionuklidokat immobilizáljuk, azaz valamilyen beágyazóanyag használatával lecsökkentjük azok migrációs tulajdonságait. Azáltal, hogy a folyékony radioaktív hulladékokat egy jó immobilizációs képességgel

rendelkező anyagba ágyazzuk, a beágyazott radionuklidok egy esetleges tárolóedény sérülés, vagy a hirtelen megváltozott geológiai, illetve hidrogeológiai viszonyok következtében bekövetkező kijutásának valószínűsége jelentősen lecsökkenthető.

A Paksi Atomerőműben jelenleg a folyékony radioaktív hulladékok kondicionálására cementezést alkalmaznak. A hulladék kémiai jellemzőitől függően több receptúra alapján készül el a szilárdított hulladék, amellyel szemben a támasztott követelmények igen sokrétűek.

A Paksi Atomerőműben a szilárdított folyékony radioaktív hulladékoknak az alábbi (5. táblázat) átvételi követelményeknek kell megfelelniük [70]:

5. táblázat: A szilárdított radioaktív hulladékok átvételi követelménye a Paksi Atomerőműben

Vizsgált paraméter	Átvételi kritérium						
Szerkezeti stabilitás	A megszilárdult cementkő nyomószilárdsága legalább 10-30 N/mm ² . Üregtérfogat (az aktív térkitöltés felett és a konténer fedél alatti térrész) maximum 10%.						
Korrozív anyagok	Kevesebb, mint 1 súly %.						
Hő- és sugárzás hatásai	Ha 20 W/m ³ -nél nagyobb a hőfejlődés, a hatásait elemezni kell.						
Szabad folyadék	Maximum 1 térfogat % (a megszilárdult cementkő felületén megragadó folyadék).						
Kelát- és komplexképző anyagok	A kondicionálásra kerülő hulladék maximum 0,5 %-a.						
Kioldódás	Az egységes izotópok kioldódási sebessége nem haladhatja meg a $0,5 \cdot 10^{-6}$ g/cm ² /s értéket. A cementezett radioaktív hulladékokból az egyes izotópok effektív diffúziós állandója nem haladhatja meg a 10 ⁻⁷ cm ² /s értéket, az ASTM C1308-95 szabványnak megfelelően. Az egyedi izotópokra vonatkozó diffúziós követelmények:						
	<table border="1"> <tbody> <tr> <td>H-3</td> <td>D<10⁻⁷ cm²/s</td> </tr> <tr> <td>Cs-137</td> <td>D<10⁻⁸ cm²/s</td> </tr> <tr> <td>Co-60</td> <td>D<10⁻⁸ cm²/s</td> </tr> </tbody> </table>	H-3	D<10 ⁻⁷ cm ² /s	Cs-137	D<10 ⁻⁸ cm ² /s	Co-60	D<10 ⁻⁸ cm ² /s
H-3	D<10 ⁻⁷ cm ² /s						
Cs-137	D<10 ⁻⁸ cm ² /s						
Co-60	D<10 ⁻⁸ cm ² /s						
Homogenitás	A cementezési technológiának kell biztosítania a végtermék homogenitását.						

A kis- és közepes aktivitású radioaktív hulladékok kondicionálásának egyéb lehetséges módjai a cementbe, bitumenbe, valamint polimerbe ágyazás, illetve a vitrifikáció. Mindegyik technológiának megvan a maga előnye, illetve hátránya, mind gazdasági, mind biztonsági szempontból, azonban napjainkban a polimerbe való beágyazás egyre nagyobb figyelmet kap. Dolgozatomban én is a folyékony radioaktív hulladékok geopolimerekbe történő beágyazásával foglalkozom [71]. A hulladékfeldolgozás során keletkezett szilárdított hulladékoknak magas kémiai, hő- és sugárzás ellenálló képességgel kell rendelkeznie, valamint a végtermék homogén szerkezetűnek, a fizikai, valamint a kémiai tulajdonságok szempontjából stabilnak, illetve kiemelkedő mechanikai szilárdságúnak kell lennie [72].

4.4. *Radionuklidok migrációs tulajdonságai a környezetben*

Környezetvédelmi szempontból a stroncium és cézium izotópok migrációs tulajdonságainak vizsgálata az egyik legfontosabb. Ennek oka a viszonylag hosszú felezési idejük – Sr-90 esetében 28 év, Cs-137 esetében 30 év –, a nagy sugárzási energiájuk, valamint a táplálékláncban, az élő szervezetekben való nagy akkumulálódó képességük. Emellett számos kémiai hasonlóságot mutatnak bizonyos biogén elemekhez, (mint például a stroncium a kalciumhoz), így ezek könnyen akkumulálódhatnak mind a növényekben, mind pedig az emberi és állati szervezetekben.

A Cs-137 esetében a talajban történő migráció kisebb mértékű, mint a már említett Sr-90 izotópé. Ennek az az oka, hogy a Cs-137 agyagásványokhoz való kötődése sokkal erősebb, mint a Sr-90 izotópé. Különböző kutatások alapján megállapítható, hogy az agyagásványok a céziumot olyan erősen képesek megkötni, hogy a növények jelentősebb mennyiségű céziumot nem képesek a talajból felvenni [73-75]. Azokban a talajokban, ahol a kálium-ionok nagy koncentrációban vannak jelen, jelentős mértékben csökken a cézium adszorpciója. A cézium adszorpciójának sorrendje a különböző agyagásványokon a következő [24]:

illit > montmorillonit > kaolinit

A vizsgált anyag részecskéinek környezetben való terjedését a diffúzióval jellemezhetjük, melynek célja a koncentráció kiegyenlítés, ahol a részecskék a magasabb koncentráció felől az alacsonyabb koncentráció felé haladnak. A folyamatokat az energia szétoszlás

szempontjából a termodinamika II. főtétele, matematikai szempontból pedig a Fick-törvények írják le [76].

Azokban az esetekben, ahol a lejátszódó folyamatok időben állandóak, és a hajtóerő az anyagáramlás irányában fennálló lineáris koncentráció gradiensen alapul, ott Fick I. törvényét alkalmazzuk.

$$\phi_m = -D \frac{\Delta C}{\Delta x} \quad (4.4.1)$$

$$\phi_m = \frac{\Delta m}{A \times \Delta t} \quad (4.4.2)$$

ahol,

- ϕ_m – a tömegfluxus [$\text{kg}/(\text{m}^2\text{s})$]
- D – a diffúziós együttható [m^2/s]
- C – a koncentráció [kg/m^3]
- x – az agyag által megtett úthossz [m]
- m – tömeg [kg]
- A – az áramlási keresztmetszet [m^2]
- t – az eltelt idő [s].

Azon esetekben, ahol a koncentráció nem csak térben, de időben is változást mutat, Fick II. törvényét alkalmazzuk. Ebben az esetben elmondhatjuk azt, hogy egy adott ponton megfigyelhető koncentráció változás mértéke egyenesen arányos az adott pillanatban lévő lineáris koncentrációgradiens helyvel való változásával [76].

$$\frac{\Delta C}{\Delta t} = D \frac{\Delta\left(\frac{\Delta C}{\Delta x}\right)}{\Delta x} \quad (4.4.3)$$

ahol,

- $\frac{\Delta\left(\frac{\Delta C}{\Delta x}\right)}{\Delta x}$ – lineáris koncentrációgradiens helyvel való változása.

A Fick-törvények általános felírásai az alábbiak:

- Fick I. törvénye:

$$\phi_m = -D \frac{\Delta C}{\Delta x} \quad (4.4.4)$$

- Fick II. törvénye:

$$\frac{\Delta C}{\Delta t} = -D\nabla^2 C \quad (4.4.5)$$

ahol,

- C – a koncentráció [kg/m^3]
- t – az eltelt idő [s]
- D – a diffúziós együttható [m^2/s]
- $\nabla^2 C$ – a koncentráció irányába történő térbeli változási sebesség [76].

5. Radioaktív sugárzások mérése

A gyakorlati mérés technika feladata a radioaktív mintában található radionuklidok minőségi és mennyiségi összetételének meghatározása. Ezen feladatok elvégzéséhez spektrometriai mérések szükségesek. A spektrometria elvi alapja, hogy az adott izotópból kibocsátott radioaktív részecskék vagy gamma-fotonok energiája jellemző a kibocsátó atommagra. A kibocsátott részecske vagy foton energiájának mérésével következtetni lehet a kibocsátó izotópra, az időegység alatt regisztrált részecskék számából pedig az adott izotóp aktivitására. Mindezek ismeretében a spektrometriai mérések alkalmasak a radionuklidok minőségi, valamint mennyiségi meghatározására.

Munkám során gamma-spektrometriai és radonexhalációs méréseket végeztem, így a továbbiakban ennek mérés technikáját foglalom össze.

5.1. Gamma-sugárzó radionuklidok aktivitáskoncentrációjának meghatározása

Gamma-sugárzás

A magátalakulások eredményeként létrejövő termék mag a legtöbb esetben energetikailag instabil állapotba kerül. Az atommagok is diszkrét energianívókkal jellemezhetők, melyek közötti átmenet elektromágneses sugárzás kibocsátásával jár, melynek nagysága megegyezik a sugárzás energiájával. Az átmenet közben keletkező fotonok (gamma-sugár) energiája néhány 10 keV - néhány MeV között mozog. A γ -sugárzás energiája specifikus, diszkrét és monoenergetikus. Ezen fotonok diszkrét energiájának detektálásán alapulnak a gamma-spektrometriai mérési módszerek [64].

A gamma-sugárzás és az anyag kölcsönhatása során három kölcsönhatást különböztetünk meg. Ez a fotoeffektus, a Compton-szórás és a párkeltés [64].

A fotoeffektus során a gamma-foton egy atomi elektronnal lép kölcsönhatásba, melynek következtében az elektron kilöködik és elhagyja az atomot. A folyamat során a gamma-foton teljes energiája átadódik a kilökött elektronnak. A kilöködés során keletkezett üres elektron hely egy külsőbb pályán található elektronnal feltöltődik, melynek következtében karakterisztikus röntgen-fotonok keletkeznek. A keletkező fotonok energiája pedig megegyezik az elektronelektronok energianívóinak különbségével.

A Compton-szórás esetében a gamma-foton energiája csak egy részét adja át az elektronnak, a maradék energiáját pedig egy szórt foton viszi tovább magával. A szórt gamma-foton útja során képes újabb kölcsönhatás kialakítására, mely energiájától függően ez lehet egy újabb Compton-szórás vagy egy fotoeffektus.

Nagy energiájú gamma-sugárzás esetében jellemző kölcsönhatási forma a párkeltés. Amennyiben a gamma-foton küszöbenergiája eléri a $E_\gamma \geq 2m_e c^2 = 2 \times 511 \text{ keV}$ értéket, az atommag erőterébe beérkező gamma-foton elektron-pozitron párrá alakulhat [64].

A gamma-sugárzás detektálásának alapja, hogy a töltéssel rendelkező részecske a detektorban, a detektor anyagával kölcsönhatásba lépve képes ionizációs és gerjesztési folyamatok során ionpárokat és fényfotonokat létrehozni. A keletkezett fotonok, illetve töltéssel rendelkező részecskék összegyűjtésre kerülnek, majd a detektorok kimeneténél, feldolgozható feszültség vagy áram impulzussá alakulnak. Ennek amplitúdója arányos az abszorbeált gamma-foton energiájával.

Gamma-sugárzás detektálására gázionizációs-, szcintillációs- és félvezető-detektorokat alkalmazhatunk. Munkám során félvezető-detektoros gamma-spektrometriai módszert alkalmaztam, ezért annak működési elvét fejtem ki részletesen [64].

Félvezető detektoros gamma-spektrometria

A gamma-spektrometria széles körűen alkalmazott módszer, amely egyaránt alkalmas a mintában levő gamma-sugárzó radionuklidok mennyiségi, valamint minőségi meghatározására.

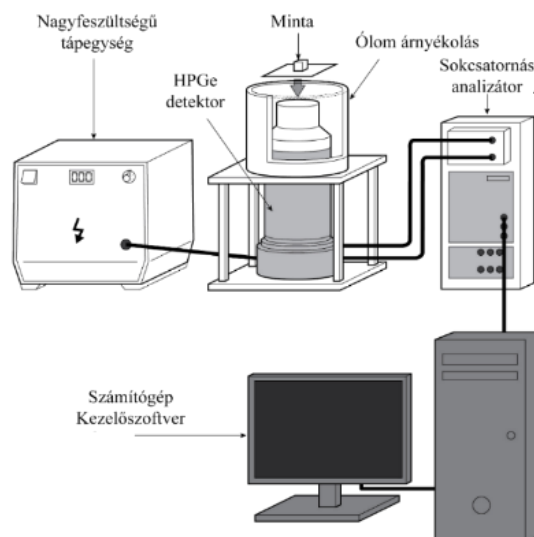
A félvezető detektorok anyagára jellemző, hogy az atomok betöltött vegyértéksávjai és az üres vezetési sávjai között úgynevezett tiltott sáv található. Nagy tisztaságú félvezetők

esetében a tiltott sávban elektronok nem tartózkodhatnak. A legelterjedtebb ilyen anyag a Si és a Ge. Amennyiben a félvezető anyagába 3 vagy 5 vegyértékelektronnal rendelkező szennyező anyagot juttatunk, létrehozunk a p-típusú azaz az elektronhiányos és az n-típusú félvezetőket, melyek elektron többlettel rendelkeznek. Ha a p- és az n-típusú félvezetőket érintkezésbe hozzuk, akkor azok felülete a töltés kiegyenlítődés miatt semlegesítődik, ezt nevezzük kiürített tartománynak és ez a réteg képezi majd a detektorok érzékeny térfogatát. Amennyiben ebbe a tartományba egy ionizáló részecske érkezik, töltéskülönbség alakul ki és a réteg vezetővé válik, a folyamat pedig áramimpulzus formájában érzékelhető. A folyamat során keletkező töltéshordozók száma arányos lesz az őket kiváltó részecske energiájával, mely következtében a félvezető detektorok alkalmasak energiaszelektív mérésekre. A félvezető detektorok tulajdonképpen szilárd ionizációs detektoroknak tekinthetőek, hiszen az ionizáció egy szilárd, félvezető anyagban történik.

A gamma-spektrometriai mérés során felvett gamma-spektrum információkat szolgál a nuklidok minőségéről, a detektorba érkező foton energiája alapján, valamint információt szolgál a nuklid mennyiségéről, melyre a kapott csúcs alatti terület nagyságából következtethetünk.

A minőségi meghatározás alapját képezi az, hogy az egyes izotópok által kibocsátott gamma-sugárzás diszkrét energiájú és jellemző a kibocsátó izotópra, ami ez alapján beazonosítható. A mennyiségi meghatározás a beérkező sugárzás intenzitása alapján történik. Az egyes minták aktivitását relatív vagy abszolút módszerrel határozhatjuk meg. A relatív módszer akkor használható, ha a meghatározandó mintának megfelelő összetételű, azaz azonos izotópokat tartalmazó, ismert aktivitású mintánk van. A minták többi paraméterének, mint például a mérési geometriának, vagy akár a sűrűségnek is azonosnak kell lennie. Az ismert aktivitású mintával meghatározzuk az egységnyi aktivitás által kiváltott csúcsterületet, majd az ismeretlen aktivitású minta megfelelő csúcsát kiválasztva, a csúcsterületeket összehasonlítva számoljuk az aktivitást. Az értékeket azonos időtartamra és tömegre kell vonatkoztatni [64, 77-78].

A gamma-spektrométerek detektorból, előerősítóből, erősítóből, nagyfeszültségű tápegységből és egy- vagy sokcsatornás analízátorból állnak, ezt láthatjuk a 9. ábrán. Az elektronikai egységek mellett a rendszer része egy ólomtorony. Ez egy alacsony háttérű kamra, mely arra alkalmas, hogy a laboratórium természetes háttérsugárzásának zavaró hatását árnyékolással a lehető legkisebb mértékre csökkentse [79-81].



9. ábra: A HPGe félvezető gamma-spektrometriai mérésrendszer felépítése [81]

5.2. Radon aktivitáskoncentráció meghatározása

Radon jellemzői

A radon színtelen, szagtalan nemesgáz. Szerkezetéből adódóan nem képes kémiai kötések kialakítására más kémiai elemekkel. Vízen és szerves oldószerekben hőmérséklettől függően jól oldódik. A természetben három izotópjá fordul elő (6. táblázat), a radon (Rn-222), a toron (Rn-220) és az aktínion (Rn-219) [83].

6. táblázat: Radon izotópok jellemzői

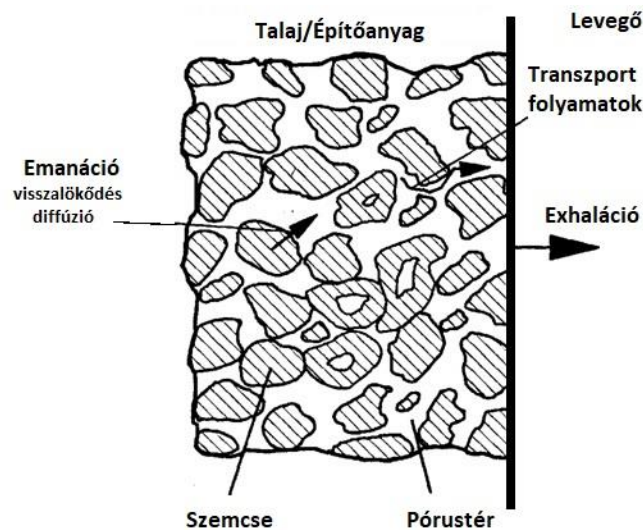
Radon izotóp	Rn-222 (radon)	Rn-220 (toron)	Rn-219 (aktinon)
Bomlási sor anyaeleme	U-238	Th-232	U-235
Radon anyaeleme	Ra-226	Ra-224	Ra-223
Anyaelem felezési ideje	1622 év	3,64 nap	11,4 nap
Izotóp felezési ideje	3,824 nap	55,6 s	3,9 s
Stabil végmag	Pb-206	Pb-208	Pb-207

A radon a rádiumból (Ra-226) α -sugárzással keletkezik. A keletkező alfa-részecske nagy ionizációs képességgel, azonban kis ionizációs úthosszal rendelkezik. Ezen tulajdonságai miatt a radon egészségkárosító hatását abban az esetben fejt ki, amennyiben az bekerül a szervezetbe. Ismert egészségkárosító hatásai közé tartozik a tüdőrák kialakulásának kockázata, azáltal, hogy a radon leányelemei megkötődhetnek a levegőben található

aeroszol részecskék (por, füst) felületén, melyekkel belégzés során a tüdőben lerakódhatnak [82-83].

Radonemanáció és -exhaláció

Környezetünkben a radon a kőzetekben, talajokban és az építőanyagokban egyaránt előfordul. Ezen anyagokból a radon a környezetbe exhaláció során kerül ki. A radon diffúziós és konverziós folyamatok következtében képes kijutni az anyagból. A kijutás mértékét számos tényező befolyásolja, ilyen az adott anyag kezdeti Ra-226 aktivitáskonzentrációja, a szemcseméret, az anyag szerkezete és a diffúziós úthossz. Az anyag pórusterébe a Ra-226 bomlása következtében keletkezett radonatomok emanáció során jutnak ki. Emanációs tényezőnek nevezzük az anyag pórusaiban található és az anyagban összesen keletkezett radon hányadosát. A pórustérből a radon atomok diffúziós és konverziós folyamatok következtében kerülnek ki a környezetbe. Az egységnyi idő alatt, egységnyi felületen kijutó radonok mennyiségét exhalációnak nevezzük, melynek mértékegysége $\text{Bq/m}^2\text{s}^{-1}$ [82-85].



10. ábra: A radon emanációja és exhalációja az anyagban [86]

Méréstechnika szempontjából lehetőség van a radon közvetlen, valamint a leányelemein keresztül történő detektálására. A detektálás során a radon, illetve leányelemei alfa-, béta- és gamma-sugárzását észleljük a megfelelő detektor kiválasztásával. Radonkoncentráció meghatározására alkalmazhatunk aktív, illetve passzív detektorokat, ionizációs kamrákat, félvezető detektorokat, szcintillációs detektorokat, illetve nyomdetektorokat.

Dolgozatomban az akkumulációs mérési módszert mutatom be, melynek részét képezi az aktív, ionizációs kamra típusú detektor.

Gáztöltésű detektorok

A gáztöltésű detektorok működése a gáztér és az abba érkező sugárzás közötti ionizációs kölcsönhatáson alapszik. Ennek megfelelően a gázionizációs detektorokkal csak azok a részecskék detektálhatóak, amelyek ionizációs tulajdonságokkal rendelkeznek.

A gáztöltésű detektorok esetében egy zárt gáztérben elhelyezett két elektródra egyenfeszültséget kapcsolunk, a megfelelő polaritású elektródok „összegyűjtik” a gáz térben, sugárzás hatására keletkezett töltéssel rendelkező részecskéket. A gáztérben létrejövő primer ionizációk száma, arányos a részecske által leadott energia nagyságával. Az ilyen jellegű detektorok az esetek többségében alkalmasak energiaszelektív mérésekre, hiszen a kialakuló impulzus nagysága arányos lesz a leadott energiával.

Az elektródokra kapcsolt egyenfeszültség függvényében gázionizációs detektorok különböző típusait különböztetjük meg. Ilyen az ionizációs kamra, a proporcionális számláló, a GM számláló, gázszcintillációs detektor, korona számláló stb. [64, 77-78].

Ionizációs kamra és az Alpha Guard készülék

Az ionizációs kamrák esetében az alkalmazott nagyfeszültség viszonylag alacsony. A kialakuló térerő hatására a töltéshordozók összegyűjtése mellett a gáztérben lejátszódó rekombináció mértéke is csökken. Mivel működése során csak összegyűjti, de nem sokszorozza a primer ionizációban keletkezett töltéshordozókat, kis áram keletkezik, kis impulzus alakul ki, emiatt erősítő berendezésre van szükség működtetése során.

A műszer képes pillanatnyi mintavételezésre (talajgáz radon koncentrációjának, valamint talaj radon exhalációjának kiszámításához) és hosszú távú monitorozásra (beltéri levegő radonaktivitás-koncentrációjának nyomonkövetésére) is. A műszer $2 \text{ Bq/m}^3 - 2 \times 10^6 \text{ Bq/m}^3$ mérési tartományban mér, és a radon aktivitáskoncentráció mellett megadja a mérés abszolút hibájának, a hőmérsékletnek, a légnyomásnak és a relatív páratartalomnak az értékét is [87].

A radonexhaláció meghatározásának egyik legelterjedtebb az úgynevezett akkumulációs mérési módszer. A mérés lényege, hogy az exhalálódott radont egy zárt edényben

összegyűjtjük, majd az eltelt idő, a bomlás, valamint a radon-koncentráció ismeretében meghatározható a kiexhalálódó radon mennyisége [87].

5.3. *Sugárterhelés becslése számítógépes szimulációval (RESRAD-BUILD modellező program)*

A RESRAD számítógépes kód család egyik tagja a RESRAD-BUILD számítógépes kód csomag, amelyben különféle modellek alkalmazásával meghatározható egy épületben lakó és vagy dolgozó személyek esetében felmerülő lehetséges többletdózis. A modell segítségével meghatározhatjuk, hogy adott építőanyagokból, adott forrásokból -ami lehet pont, vonal, felület és térfogat, az általunk meghatározott épületen belül mekkora sugárterhelést szenved el egy adott személy. A RESRAD-BUILD modell alkalmas egy legfeljebb három szobából és négy különböző forrástípusból álló épület modellezésére, melyben 10 receptor, azaz lakó és 10 különálló forráshely található. A forrástípusokban a modell homogén radionuklid forrást feltételez, valamint a forrás és a receptor között különféle árnyéklások elhelyezésére is lehetőséget biztosít. A programkód hat különböző expozíciós utat határoz meg a receptorok és a források között [86]:

- Közvetlenül a forrásból származó külső sugárterhelés
- A padlózatból származó külső sugárterhelés
- Az inhalálásból származó belső többletdózis
- Akkumulációból származó külső sugárterhelés
- Radon és további bomlástermékek által okozott többletdózis
- Lenyelésből származó belső többletdózis.

A program segítségével különféle forgatókönyveket modellezhetünk, melyekről a modellezés végén egy szöveges, valamint grafikus elemeket tartalmazó riportot kapunk.

A források típusa, valamint a szobák száma mellett a RESRAD-BUILD programkód lehetőséget nyújt arra, hogy módosíthassuk a szobák szellőztetésének mértékét, a szobák térfogatát, a falak vastagságát. Meghatározhatjuk a falak radionuklid összetételét, a receptor személyek pontos helyét, valamint meghatározhatjuk, hogy az általunk megadott paraméterekkel egy rövid, egy éves, vagy akár egy hosszabb időszakra vonatkozó modellezést szeretnénk-e [86].

A program segítségével meghatározható az összes külső sugárforrásból származó dózis, az alábbi összefüggés segítségével [86]:

$$D_{\text{külső}}(mSv \text{ év}^{-1}) = \frac{ED}{365} \times F_{in} \times F_i \times C \times DCF \times F_g \quad (5.3.1.)$$

ahol,

- ED – a kitettség [nap] (365)
- $F_{in} F_i$ – a bent tartózkodási idő, az i dimenzió mentes szobában (0,8)
- C – a radionuklidok aktivitáskoncentrációja [Bq/g]
- DCF – dóziskonverziós faktor (ICRP 72 felnőttekre vonatkozó értéke) (0,7)
- F_g – a sugárforrás geometriai paraméterei (méret, árnyékolás, vastagság, elhelyezkedés)

A radonból származó dózisterhelés modellezése esetében a program az alábbi egyenlet segítségével határozza meg radon koncentrációját [86]:

$$\frac{dC_{Rn}}{dt} = \frac{EA}{V} - (\lambda + \vartheta) \times C_{Rn} + \vartheta C_{Rn0} \quad (5.3.2)$$

ahol,

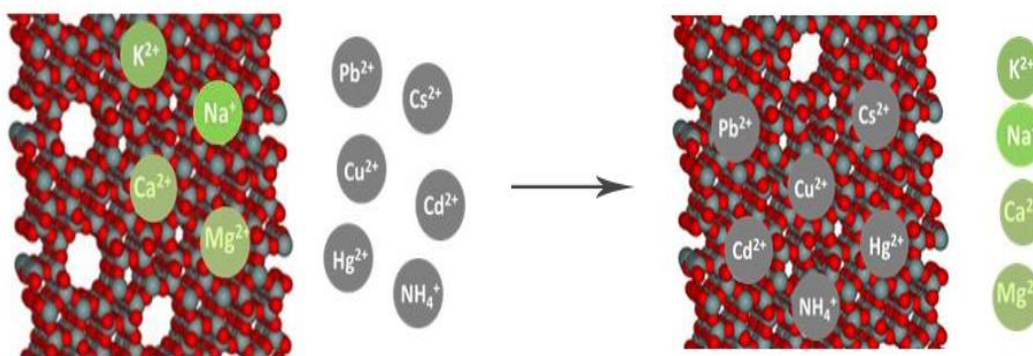
- C_{Rn} – belső radon koncentráció [Bq/m³]
- E – radon exhaláció mértéke [Bq/(m²/h⁻¹)]
- A – a szoba mérete [m²]
- V – a szoba térfogata [m³]
- λ – a radon bomlási állandója [1/óra] (0,007)
- ϑ – a légcseres mértéke [1/h]
- C_{Rn0} – a külső radon koncentráció [Bq/m³].

6. Alkalmazott anyagok bemutatása

Laboratóriumi munkám során, több különböző agyagásvány, illetve NORM anyag lehetséges alkalmazási lehetőségeit vizsgáltam meg. A továbbiakban ezen anyagok bemutatása következik.

➤ Agyagásványok

Az agyagásványok ioncsere-folyamatok tekintetében tapasztalt jelentőségére a XIX. század közepén figyeltek fel a kutatók. A talajokban lejátszódó kémiai folyamatokat vizsgálva megállapították, hogy az agyagásványok (alumino-szilikátok) rétegrácsos szerkezete nagymértékben hozzájárul a különféle ioncsérés folyamatokhoz. A fő szerkezeti egységei a SiO_4 -tetraéderek és az AlOOH -oktaéderek, melyek összekapcsolódásának sokfélesége biztosítja az agyagásványok változatos szerkezetét. Jelentős kationcserélő képességgel azon agyagásványok rendelkeznek, amelyekben az oktaéderben a háromértékű kationt kétértékű kation, illetve a tetraéderben a négyértékű szilíciumot háromértékű kation váltja fel, ezáltal pedig az agyagásványok szerkezetében negatív töltés alakul ki. Az így kialakult negatív töltésű váz pedig a kationcsere folyamatok során semleges töltésűvé válik. A kationcserélő tulajdonságuk miatt az agyagásványokat az ipar számos területén alkalmazzák. Napjainkban egyre több kutatás foglalkozik folyékony radioaktív hulladékok kondicionálásának vizsgálatával agyagásványok hozzáadásával kiemelkedő kationcserélő tulajdonságaik miatt (11. ábra) [89].



11. ábra: Kationcsere folyamatok az agyagásványokban [89]

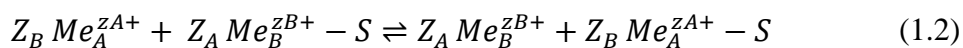
Az ioncsere folyamatokat leggyakrabban az adszorpciós modellel jellemzik, melynek legnagyobb hátránya az, hogy a modell szerint az adszorpció csak a felület üres helyein játszódik le, melynek célja a felületi energia csökkentése. Ennek általános leírása az alábbi [89]:



Ahol:

- S – a felületen lévő kötőhelyek száma.

Abban az esetben, ha a reakció során két vagy annál több ion is megkötődik, kompetitív adszorpcióról beszélhetünk. Ekkor a 7.1.2 egyenletben leírtak szerint a Z_B^+ töltésű Me_B ionok is abszorbeálódnak [89].



Az ioncsere folyamatok ezzel szemben nem csak a felületen mennek végbe, hanem a már borított felületeken is lejátszódhat szubsztitúció során.

Ezen folyamatok leírása izoterma-egyenletek segítségével [89]:

$$c/a = (c + K)/z \quad (7.1.3)$$

$$c_A/a_A = (c_A + K_A + K_{AC_B}/K_B)/z \quad (7.1.4)$$

$$c_A/a_A = (c_A + K_{AC_B}/K_B)/z \quad (7.1.5)$$

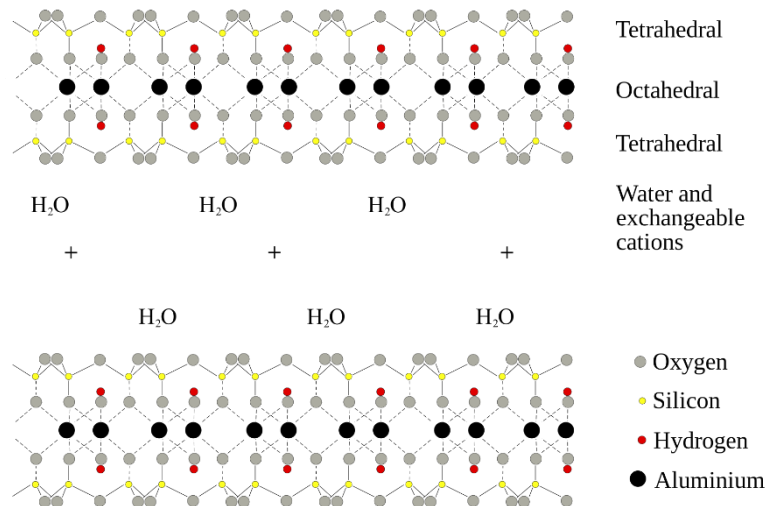
Ahol,

- c – a szorbeálódó anyag koncentrációja az egyensúlyi oldatban
- a – az egységnyi felületen felhalmozódott anyagmennyiség
- z – a felületi aktív helyek, ami egyben a maximális kapacitás
- K – a kötéseerősség.

➤ Bentonit ($Al_2H_2Na_2O_{13}Si_4$)

A bentonit montmorillonit agyagásványt tartalmazó üledékes kőzet, az agyagásványok egy fajtája. A természetben számos fajtája megtalálható, attól függően, hogy épp milyen elemek alkotják a szerkezetét, mint például alumínium, kálium, kalcium és nátrium (12. ábra). A bentonit legfőbb tulajdonsága a nagy vízmegkötő képessége, ugyanis a saját térfogatánál 15-

20-szor nagyobb mennyiségű vizet képes a szerkezetében megkötni. Magas kationmegkötő képességgel is rendelkezik [90]. Kation megkötő képessége miatt széles körben alkalmazzák az olajkutak fúrásánál, illetve adalékanyagként építőiparban, a kozmetikumok gyártásánál, valamint számos más területen. Mindemellett pedig kiváló adalékanyagként szolgálhat a folyékony radioaktív hulladékok kondicionálása során [91].

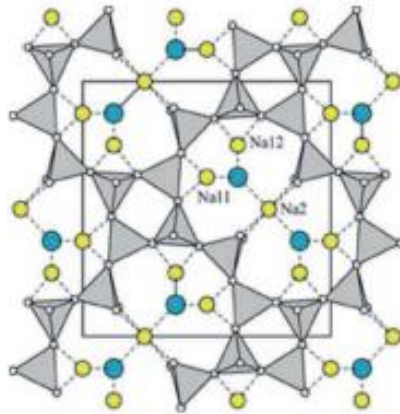
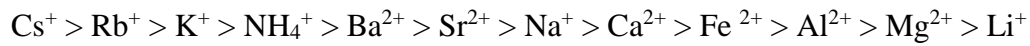


12. ábra: Bentonit (montmorillonit) szerkezetének sematikus ábrázolása [91]

➤ Zeolit ($M_{2/n}OAl_2O_3 \cdot xSiO_2 \cdot yH_2O$)

A zeolit megnevezés egy gyűjtőnév, ugyanis több, mint 40 különböző ásványt foglal magába. A zeolit a földkéreg alkotó elemeit, alkálifémek, valamint alkáliföldfémek kationjait tartalmazó, szivacsos, üreges szerkezetű agyagásvány. A természetben bázikus kiömlési kőzetek üregeiben, hasadékaiban keletkeznek, de emellett megtalálhatóak még a hidrotermális ércásványok kísérő ásványaiként is. A természetben előforduló zeolitok a vulkáni hamuból összecementálódott riolittufák kristályos változatai. A különböző eredetű zeolitok összetétele igen változatos. Összetétele attól függően változik, hogy képződésük során milyen mikroelemeket gyűjtöttek össze az őket körülvevő földkéregből. Az ipar számos területén alkalmazzák molekulaszűrőként, ioncserélő gyantaként, valamint nagy nedvességmegkötő tulajdonsága miatt gyakran alkalmazzák nedvességmegkötő célokra kertészetekben, valamint a hulladékkezelés területén [92].

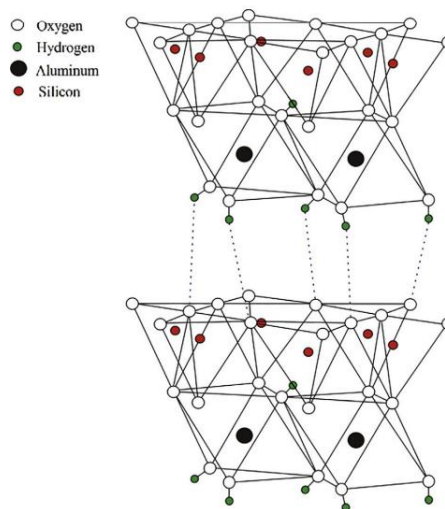
Agyagásványként szerkezetéből adódóan (13. ábra) tökéletesen alkalmas ioncsere folyamatok végrehajtására. 1960-as években a zeolitokkal kapcsolatos kutatások alapján megállapították, hogy a zeolit kation cserélő képessége az alábbi sorrend szerint alakul [93]:



13. ábra: Zeolit szerkezetének sematikus ábrázolása [93]

➤ Kaolinit ($\text{Al}_2[\text{Si}_2\text{O}_5](\text{OH})_4$)

A kaolinit a fillo- vagy rétegszilikát agyagásványok alcsoportjába tartozó ásványcsoport. Ez az egyik legfontosabb kőzetalkotó agyagásvány. Tetraéderez szerkezetű (14. ábra). Elsősorban földpátok aprózódásával keletkeznek, de a természetben önállóan is előfordulnak. Megjelenését tekintve fehér színű, réteges, valamint pikkelyes szerkezetű, puha agyagásvány [94-95].



14. ábra: Kaolinit szerkezetének sematikus ábrázolása [95]

➤ Vörösiszap

A vörösiszap a timföldgyártás során keletkező melléktermék. A timföldgyártási technológia egyik lépése a bauxit lúgos feltárása, amely tömény nátrium-hidroxid oldattal

történik. A feltárási folyamat során keletkező vörösiszapban sok nátrium-hidroxid marad vissza, amely erősen bázikussá teszi az anyagot. A keletkezett melléktermék mennyisége igen jelentős, nagyságrendileg megegyezik a technológiában előállított timföld, azaz, alumínium-oxid mennyiségével [96]. Magyarországon évente 4 millió tonna vörösiszap keletkezik a timföldgyártás során. A keletkezett melléktermék kémiai tulajdonságai miatt II. kategóriájú veszélyes hulladéknak minősül, melyet többek között zagytározókban lehet tárolni [97].

A vörösiszapot számos esetben használják újra, ilyen például a belőle történő fém visszanyerés (Fe, Al, Ti, Ga, V, Sc), pigmentek és festékek előállításához, katalitikus folyamatokhoz, talaj módosítóként, kerámiagyártáshoz, adszorbens anyagként és nem utolsósorban építőipari adalékanyagként [98].

Kísérleti rész

Munkám során a NORM anyagok alkalmazásainak két lehetséges módját vizsgáltam meg: az építőipari és a radioaktív hulladékok beágyazásánál adalékanyagként történő alkalmazhatóságukat. Ebben a fejezetben bemutatom az alkalmazott mérőberendezéseket, valamint a két alkalmazási területhez elvégzett kísérleteket, azok mérési körülményeit.

7. NORM anyagok építőiparban való alkalmazhatóságának vizsgálata

Elvégzett munkám másik célja, a NORM anyagok építőiparban való alkalmazhatóságának vizsgálata sugárvédelmi szempontból, melyhez az alábbi mérési módszereket alkalmaztam.

7.1. Kémiai és ásványi anyagösszetétel meghatározása

Vizsgálataim során az alábbiakban felsorolt NORM anyagok kerültek kiválasztásra, meghatározásra került a kémiai összetételük, az ásványi anyag összetételük, és a radionuklid összetételük:

- Fahamu
- Pernye
- Zagy
- Vörösiszap
- Szénsalak

A vizsgált anyagok kémiai összetétele (7. táblázat), Thermo Scientific ARL PERFORM'X típusú röntgen fluoreszcenciás spektroszkóp segítségével került megállapításra [99].

7. táblázat: Felhasznált alapanyagok kémiai összetétele [99].

Vizsgált alapanyag	Kémiai összetétel [tömeg%]									
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	LOI	K ₂ O	Na ₂ O	TiO ₂
Salak	47,01	0,93	1,78	4,64	0,9	0,08	41,38	0,14	0,81	0,04
Pernye	31,3	7,57	3,43	25,51	1,6	0,14	25,5	1,33	0,54	0,38
Vörösiszap	7,02	21,55	25,24	9,1	0,69	1,37	14,24	0,15	4,36	3,05
Fahamu	0,21	0,33	0,15	38,07	36,64	0,13	21,39	0,01	0,26	0,72
Zagy	51,35	16,13	8,52	15,72	2,38	-	0,57	0,68	0,14	3,5
Cement	25,13	5	2,3	66,02	1,55	-	-	-	-	-

A kémiai összetétel mellett meghatározásra került a felhasznált anyagok ásványi összetétele (8. táblázat) PANanalytical Empryan X-ray diffraktométer alkalmazásával (Cu $K\alpha$, 15418 nm hullámhosszon) [99].

8. táblázat: Felhasznált alapanyagok ásványi anyag összetétele [99].

Vizsgált alapanyag	Ásványi összetétel
Salak	kvarc, hematit, mullit, gipsz
Pernye	kvarc, hematit, diopszid, amorf fázis
Vörösiszap	vas-oxidok, vas-hidroxidok, alumínium-hidroxidok, nátrium-szilikátok, kalcium-karbonátok, kvarc, gipsz
Fahamu	kalcium-karbonátok, magnézium-karbonátok, szulfátok
Zagy	kvarc, kalcium-karbonát, hematit
Cement	Alit, belit, felit, celit

7.2. Gamma-spektrometria

A minták Ra-226, Th-232 és K-40 aktivitáskoncentrációja gamma-spektrometriai mérések során került meghatározásra, a már korábban említett ORTEC GMX40-76 nagy tisztaságú germánium félvezető detektorral. A detektor relatív hatékonysága 40%. A spektrumok, ORTEC DSPEC LF 8196 MCA többcsatornás analizátorral kerültek rögzítésre, majd pedig Aptec MCA szoftverrel történt a kiértékelésük.

A meghatározni kívánt izotópok közül a K-40 közvetlenül, a Ra-226 és Th-232 meghatározása a bomlástermékeiken keresztül történt. Ehhez szükséges, hogy az anyaelem (Ra-226 vagy Th-232) és a bomlástermékei között beálljon a szekuláris egyensúly. Ezt megvárva meghatározhatjuk a bomlástermékek aktivitáskoncentrációját, ami megegyezik az anyaelemével.

7.2.1. Mintaelőkészítés

A minták előkészítése az IAEA-375, talajokra vonatkozó mintaelőkészítési protokollja alapján történt. Első lépésként a mintákat szárítószekrényben 90°C-on tömegállandóságig szárítottam, majd a mintát porítottam és egy 0,3 mm-es szita segítségével leszitáltam, ezáltal egy homogén mintát kaptam. Ezt követően a porított mintát egy fóliával kibélelt, ismert tömegű Marinelli-edénybe helyeztem. Az edényt teflonszalagos szigeteléssel 30 napos időtartamra lezártam, hogy beálljon az egyensúly az anya, valamint a leányelemek között [33].

7.2.2. Kiértékelés menete

Mivel a gamma-sugárzás és az anyag közti kölcsönhatások hatáskeresztmetszete nagyban függ a foton energiájától, a detektálás hatásfoka is energiafüggő. A hatásfok meghatározásához egy ismert összetételű referencia anyagot alkalmaztam, amelynek összetétele az 9. táblázatban látható.

9. táblázat: Referencia anyag összetétele

Radionuklid	Felezési idő [nap]	Gamma energia [keV]	Gamma gyakoriság	Aktivitás [Bq]
Am-241	158004	59,54	0,359	5060
Cd-109	461,9	88,03	0,0361	14630
Ce-139	137,64	165,85	0,7995	836,4
Co-57	271,8	122,06	0,8559	891,3
Co-60	1925,2	1173,24 1332,5	0,9998 0,9998	2799
Cs-137	10976	661,66	0,8521	2466
Sn-113	115,09	391,69	0,6416	2701
Sr-85	64,85	513,99	0,983	5376
Y-88	106,63	1836,01	0,9935	5747
Cr-51	27,704	320,08	0,0983	20720
Referencia tömege:			490 g	
Referencia gyártási ideje:			2016.12.01	

A spektrum kiértékelését követően a hatásfokot az alábbi egyenlet segítségével határoztam meg:

$$\eta = \frac{N}{t_m \cdot A \cdot k_\gamma} \quad (7.2.2.1)$$

ahol:

- η – hatásfok [-]
- N – csúcs alatti terület [beütés]
- t_m – mérési idő [s]
- A – adott izotóp aktivitása a mérés időpontjában [Bq]
- k_γ – gamma gyakoriság [-]

A hatásfok meghatározását követően az alábbi összefüggés segítségével meghatározható a radionuklidok aktivitása a mérés időpontjában:

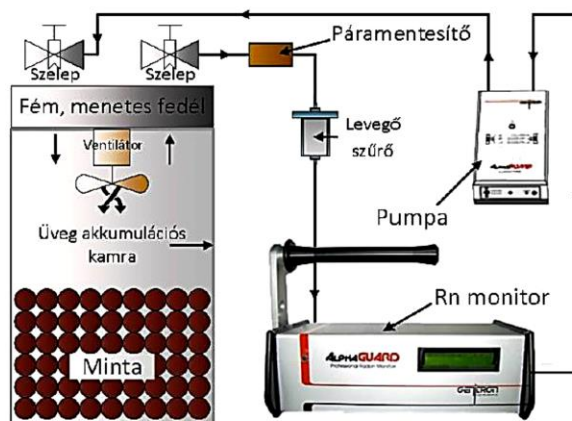
$$A = \frac{\frac{N_{minta}}{t_{minta}} - \frac{N_{háttér}}{t_{háttér}}}{\eta \cdot k_\gamma} \quad (7.2.2.2)$$

ahol:

- A – adott izotóp esetében mért aktivitás adott energia esetén [Bq]
- N_{minta} – minta esetében kapott nettó beütésszám [beütés]
- t_{minta} – minta mérési ideje [s]
- $N_{háttér}$ – háttér esetében kapott nettó beütésszám [beütés]
- $t_{háttér}$ – háttér mérési ideje [s]
- η – adott energia esetén kapott hatásfok [-]
- k_γ – gamma gyakoriság [-]

7.3. Radonemanáció és -exhaláció meghatározása

Az akkumulációs térben található radon-koncentráció a radon bomlása révén nem lineárisan nő, hanem egy határértékhez tart, amely megközelítőleg 30 nap alatt áll be [4]. A radonexhaláció meghatározásához alkalmazott akkumulációs kamrás mérőrendszer sematikus ábrázolása a 11. ábrán látható

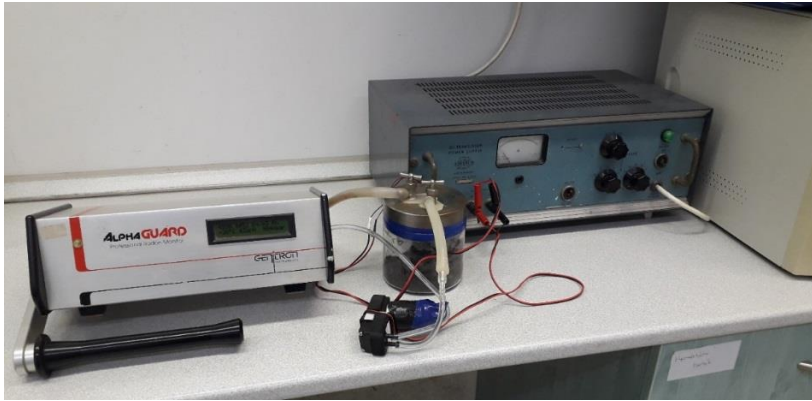


15. ábra: A radon exhaláció meghatározásához alkalmazott akkumulációs kamrás mérőrendszer sematikus ábrázolása [99]

7.3.1. Mintaelőkészítés

A vizsgálandó mintákat szárítószekrényben 24 órán át 105 °C-on tömegállandóságig szárítottam majd ezt követően a megfelelő szemcsenagyság, azaz 0,3 cm elérése érdekében leporítottam. A megfelelően előkészített mintából 150 g-ot zárható, ismert tömegű akkumulációs kamrába helyeztem, majd N₂ gázzal kiöblítettem az akkumulációs kamrát, ezt követően pedig légmentesen lezártam a mintatartót. A lezárást követően 3-4 nap elteltével a 16. ábrán látható módon összeállítottam a mérőrendszert és meghatároztam a minta Ra-222 koncentrációját. A méréshez AlphaGUARD típusú radon monitort használtam.

A műszert legalább 40 percig működtettem és a radon aktivitáskoncentráció értékeket 10 perces időintervallumonként feljegyeztem. Az 16. ábrán látható az alkalmazott mérőberendezés.



16. ábra: Radonexhaláció méréséhez használt mérőberendezés.

7.3.2. Kiértékelés menete

Első lépésként meghatározásra kerül az akkumulációs időtartam, majd ennek segítségével meghatároztam az akkumuláció során elbomló radon és a mért mennyiség közötti arányt a bomláskorrekciós faktor segítségével:

$$K = \frac{1 - e^{-\lambda * t_{akk}}}{\lambda * t_{akk}} \quad (7.3.2.1)$$

Ahol:

- K – akkumulációs bomlás korrekciós faktor [0-1]
- λ – Rn-222 bomlási állandó [1/h]
- t_{akk} – akkumulációs idő [h]

Az radon monitorról leolvasott értékeket a térfogat ismeretében, ami 1440 cm^3 , átlagoljuk, majd az alábbi egyenlet segítségével meghatároztam a minta exhalációjának mértékét:

$$E = \frac{\Delta A}{K * m * t_{akk}} * 1000 \quad (7.3.2.2)$$

Ahol:

- E – fajlagos exhaláció [$\text{mBqkg}^{-1}\text{h}^{-1}$]
- ΔA – Rn-222 aktivitása a teljes mérőrendszerben [Bq]
- K – akkumulációs korrekciós faktor [0-1]
- m – a bemért minta tömege [kg]
- t_{akk} – akkumulációs idő [h]

A Ra-226, valamint a Rn-222 közötti szekuláris egyensúlyi állapot esetében, egyensúlyi korrekciós faktor számítható úgy, hogy a 30 nap során a számított forraserősségből fejlődő

radon mennyiségét korrigáljuk az egyensúlyi állapothoz tartozó korrekciós faktoral. Ekkor megkapjuk az egységnyi tömegű, a vizsgált anyagból keletkező Rn-222 egyensúlyi aktivitását, ami nem más, mint a Ra-226 és az emanációs tényező szorzata.

$$\varepsilon = \frac{A_{Rn-222}}{A_{Ra-226}} = \frac{E * t_e * K_e}{A_{Ra-226}} \quad (7.3.2.3)$$

Ahol:

- A_{Ra-222} – a minta egyensúlyi Rn-222 aktivitása
- A_{Ra-226} – a minta Ra-226 aktivitása
- t_e – szekuláris egyensúly beálltához szükséges idő [h] (27 nap)
- K_e – egyensúlyi helyzethez tartozó korrekciós faktor (0,4) [4].

7.4. *Építőanyagok minősítésének meghatározása*

Sugárvédelmi szempontból az építőanyagok teljes körű radiológiai elemzése elengedhetetlen, ehhez a 2/2022 (IV. 29) OAH rendeletben és az EU-BSS irányelvben leírtakban meghatározottak szerint meg kell határozni az építőanyagok I-indexét (1.1 fejezet), valamint rádium ekvivalens értékét [19, 53].

Az I-index meghatározása a mért aktivitáskoncentrációk alapján történik rendeletben megadott képlet szerint (1.1. fejezet). Az aktivitáskoncentrációkat félvezető detektoros gamma-spektrometriai módszerrel határozzuk meg.

$$I = \frac{C_{Ra-226}}{300 \text{ Bq/kg}} + \frac{C_{Th-232}}{200 \text{ Bq/kg}} + \frac{C_{K-40}}{3000 \text{ Bq/kg}} \quad (7.4.1)$$

Ahol:

- C_{Ra-226} – Ra-226 aktivitáskoncentrációja [Bq/kg]
- C_{Th-232} – Th-232 aktivitáskoncentrációja [Bq/kg]
- C_{K-40} – K-40 aktivitáskoncentrációja [Bq/kg] [19,53].

A meghatározott index függvényében megadjuk, hogy melyik dóziskorlátot, milyen felhasználás mellett halad/nem halad meg.

10. táblázat: Adott dóziskorláthoz tartozó I-index értékek

	0,3 mSv/év	1 mSv/év
Nagy mennyiségben használt anyagok (beton, tégl stb.)	$I \leq 0,5$	$I \leq 1$
Felületi, kis mennyiségben használt anyagok (cserép stb.)	$I \leq 2$	$I \leq 6$

A rádium ekvivalens érték szintén az építőanyagok alkalmazhatóságát határozza meg. Amennyiben ez az érték meghaladja a 370 Bq/kg értéket, az építőanyagból származó éves többletdózis meghaladja az 1 mSv értéket (10. táblázat) [44].

$$Ra_{eq} = C_{Ra-226} + (1.43 * C_{Th-232}) + (0.077 * C_{K-40}) \leq 370 \text{ Bq/kg} \quad (7.4.2)$$

Ahol:

- C_{Ra-226} – Ra-226 aktivitáskoncentrációja [Bq/kg]
- C_{Th-232} – Th-232 aktivitáskoncentrációja [Bq/kg]
- C_{K-40} – K-40 aktivitáskoncentrációja [Bq/kg]

Mivel napjainkban a lakosság az idejének megközelítőleg 80%-át épületek beltereiben tölti, kiemelkedő fontosságú az éves effektív dózis értékének meghatározása. Így tehát a bent töltött idő, a dózisteljesítmény, valamint a konverziós tényező ismeretében az alábbi módon meghatározható az éves effektív dózis értéke:

$$AED (mSv) = D * 8760 * 0.8 * 0.7 * 10^{-6} \quad (7.4.3)$$

A konverziós tényező értéke felnőttre: 0,7, gyerekre: 0,8 és csecsemőre: 0,9 [106].

7.4.1. Mintaelőkészítés

A próbatesteket cementből, vörösiszapból, fahamuból, valamint zagyból állítottam össze az alábbiak szerint:

11. táblázat: Próbatestek százalékos összetétele

	1_Minta	2_Minta	3_Minta	4_Minta	5_Minta	6_Minta
Cement	100%		50%	75%		50%
Vörösiszap		100%	50%			
Fahamu					100%	50%
Zagy				25%		
	7_Minta	8_Minta	9_Minta	10_Minta	11_Minta	12_Minta
Cement	50%	40%	75%	90%	95%	95%
Vörösiszap	25%	20%	25%	10%	5%	
Fahamu	25%	20%				
Zagy		20%				5%

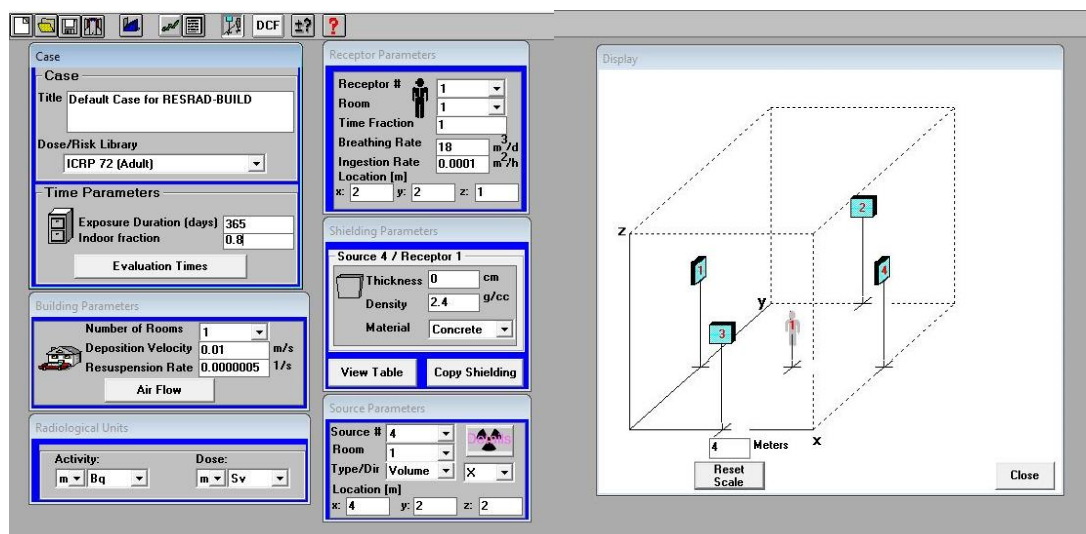
7.5. Sugárterhelés becslése RESRAD-BUILD szimulációs program segítségével

A kísérlet célja az volt, hogy megállapítsam az általam modellezett építőanyagokból épített szobában a bent tartózkodó személy többletdózisát. Esetemben különféle scenáriókat készítettem, egyik esetben a szoba falának vastagságát változtattam, a szoba méretét pedig nem, a másik esetben pedig a szoba vastagsága állandó volt, de változtattam a szoba méretét. A különféle scenáriók a 12. táblázatban láthatóak:

12. táblázat: Modellezett házak paraméterei

1. eset	Ház 1	Ház 2	Ház 3	Ház 4	Ház 5	
Szoba mérete [m²]	16	24	32	40	48	
Falvastagság [m]			0,2			
2. eset	Ház 6	Ház 7	Ház 8	Ház 9	Ház 10	Ház 11
Szoba mérete [m²]				16		
Falvastagság [m]	0,05	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5

A modellezés során egyéves időintervallumot vettünk figyelembe, valamint a receptor személy a szobák közepén helyezkedik el a 17. ábrán látható módon.



17. ábra: RESRAD-BUILD programkód kezelő felülete (saját ábra)

8. Radioaktív hulladékok beágyazásának vizsgálata

Folyékony radioaktív hulladékok beágyazására a különböző alkáli aktivált polimerek használata egy megfelelő megoldást jelenthet, hiszen mind a kémiai mind pedig fizikai paramétereik jobbnak bizonyulnak, mint a hagyományosan beágyazásra használt cement.

8.1. Mintaelőkészítés

Laboratóriumi munkám során zeolitot, bentonitot, kaolint, valamint vörösiszapot tartalmazó mátrixokat készítettem. Az alkalmazott anyagokat különböző arányokban alkalmaztam (13. táblázat), melyekhez összekötő anyagként cementet, nedvesítő anyagként pedig 8 M-os NaOH oldatot adagoltam, majd addig kevertem, amíg egy homogén masszát nem kaptam. A már formázható masszához aktív Cs-137 oldatot kevertem, majd ezt követően egy mintatartó edénybe helyeztem. A formába öntött minták ezt követően 27 napon keresztül száradtak szobahőmérsékleten az ASTM C 1308-08 szabványban előírtak alapján. A szabvány részletes bemutatása a 8.2 fejezetben található. A megfelelő idő elteltével a már megszilárdult próbatesteket egy-egy liter térfogatú műanyag edénybe helyeztem oly módon, hogy a próbatestet egy damil szál segítségével az edény fedeléhez rögzítettem, úgy, hogy a próbatest ne érjen le az edény aljára. A kioldódási vizsgálathoz

használt edénybe 250 ml desztillált vizet öntöttem, majd belelógattam a próbatesteket, hogy teljesen elmerüljenek.

13. táblázat: A próbatestekben található alapanyagok aránya

		Alapanyag neve	Keverési arány
I.	vizsgálat	Zeolit – Cement	1:1
		Zeolit – Bentonit - Cement	1:1:1
		Zeolit – Kaolinit - Cement	1:1:1
		Bentonit – Cement	1:1
		Bentonit – Kaolinit - Cement	1:1:1
		Kaolinit – Cement	1:1
II.	vizsgálat	Cement	1
		Zeolit – Cement	1:1
		Zeolit – Cement	2:1
		Bentonit – Cement	1:2
III.	vizsgálat	Vörösiszap – Bentonit – Cement	1:1:1
		Vörösiszap – Zeolit - Cement	1:1:1
		Vörösiszap – Bentonit – Cement	2:1:1
		Vörösiszap – Zeolit - Cement	2:1:1

A kioldódási vizsgálatok során az edényekben található desztillált vizet a szabványban meghatározott időközönként lecseréltem (14. táblázat), majd ezt követően félvezető detektoros gamma-spektrometria segítségével meghatároztam a próbatesteből kioldódott radionuklidok mennyiségét.

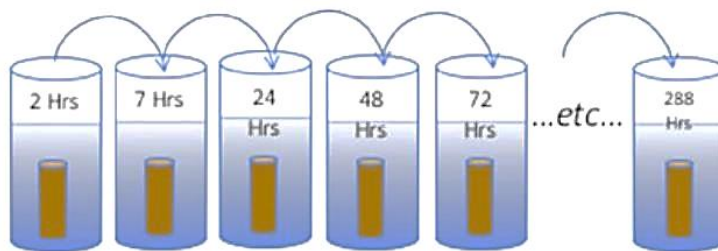
14. táblázat: A kioldódásvizsgálatok során alkalmazott periódusidők.

Periodus	Időintervallum	Összesített idő
1	2 óra	2 óra
2	5 óra	7 óra
3	17 óra	1 nap
4	1 nap	2 nap
5	1 nap	3 nap
6	1 nap	4 nap
7	1 nap	5 nap
8	1 nap	6 nap
9	1 nap	7 nap
10	1 nap	8 nap
11	1 nap	9 nap
12	1 nap	10 nap
13	1 nap	11 nap

8.2. Kioldódásvizsgálatok

A kioldódási vizsgálatok végrehajtásával szerzett információk, a kioldódási karakterisztika ismerete szükséges a dózisbecslésen túl a technológiai eljárások tervezéséhez, illetve a veszélyes, valamint radioaktív hulladékok biztonságos tárolásának tervezéséhez.

Az általam alkalmazott ASTM C 1308-08 szabvány alkalmas a beágyazott folyékony radioaktív hulladékokból kioldódó radionuklidok mennyiségének meghatározására. A kioldási szabvány lényege, hogy a próbatesteket folyadékba lógatják és adott időközönként meghatározzák a kioldódott radionuklidok mennyiségét. Ezzel megadható, hogy az adott cementezéshez használt alapanyag megfelel-e vagy sem az adott ország hulladéklerakási kritériumainak (1.1.1 fejezet) [101]. A kioldódási folyamat menete az alábbi ábrákon (18. ábra, 19. ábra) láthatóak:



18. ábra: Az ASTM C1308-08 szabvány szerinti kioldódás menetének ábrázolása [102]



19. ábra: Kioldódásvizsgálatokra előkészített próbatestek

A szabvány alkalmazásával meghatározható a differenciális kioldási százalék-tört (IFL – Incremental Fraction Leached), a teszt időtartama alatt akkumulált résztörtekből pedig a

kumulatív kioldási százalék-tört (CFL – Cumulative Fraction Leached). A differenciális, valamint a kumulatív kioldódási százalék-tört az alábbiak alapján kerül meghatározásra:

$$IFL = \frac{a_n}{A_0} \quad (8.2.1)$$

Ahol:

- a_n – a próbatestből kioldódott radionuklidok mennyisége
- A_0 – a próbatestbe eredetileg beágyazott radionuklidok mennyisége.

$$CFL = \frac{\Sigma a_n}{A_0} \quad (8.2.2)$$

Ahol:

- Σa_n – adott időintervallumban kioldódott összes radionuklidok mennyisége
- A_0 – a próbatestbe eredetileg beágyazott radionuklidok mennyisége [103-104].

8.2.1. Félvezető detektoros gamma-spektrometria

A mérés során alkalmazott detektor ORTEC GMX40-76 nagy tisztaságú germánium félvezető detektor volt. A detektor relatív hatékonysága 40%. A spektrumok ORTEC DSPEC LF 8196 MCA többcsatornás analizátorral kerültek rögzítésre, majd pedig Aptec MCA szoftverrel történt a kiértékelésük. A mérőrendszer a 19. ábrán látható.



20. ábra: A méréshez használt HPGe félvezető gamma-spektrometria mérési rendszer (saját ábra)

Az oldatok aktivitás-koncentrációjához a fentebb említett (7.2 fejezet) relatív mérési módszert használtam. A méréshez használt referencia forrás MIX-OMH-F 2015-008 volt.

- Referencia forrás adatai:
- Forrás neve: MIX-OMH-F 2015-008; MIX
- Referencia idő: 2015. április 9.

15. táblázat: Referencia minta aktivitáskoncentráció értékei

Izotóp	Gamma-energia (keV)	Gyakoriság (ky)	Aktivitás		Felezési idő (év)
			kBq	+/-	
Am-241	59,54	0,3578	1,851	0,0555	432,6
Cs-137	661,66	0,8499	5,211	0,1563	30,05
Mn-54	834,84	0,9997	7,693	0,1923	0,855
Co-60	1173,23	0,9985	14,44	0,4332	5,27
	1332,50	0,9998	14,44	0,4332	5,27

A mérési idő a referencia anyag esetén 1000 másodperc volt, s az így kapott adatok alapján meghatározásra került a hatásfok energia görbe. A hatásfok-energia görbéhez szükséges hatásfok értékeket az alábbi egyenlet használatával határoztam meg:

$$\eta_{szám} = \frac{cps_{minta} - cps_{háttér}}{A_t \cdot k_\gamma} \quad (8.2.1.1)$$

Ahol:

- a cps_{minta} – a referencia anyagból származó beütések száma [cps]
- a $cps_{háttér}$ – a háttérből származó beütések száma [cps]
- A_t – a referenciában található izotópok aktivitása a mérés időpontjában [Bq/kg]
- k_γ – az adott radionuklidhoz tartozó gamma gyakoriság.

Ezt követően meghatároztam az oldatok aktivitáskoncentrációját, az alábbiak szerint [79,81,99]:

$$A_{i,e} = \frac{cps_{minta} - cps_{háttér}}{\eta_{i,e} \cdot k_{i,\gamma}} \quad (8.2.1.2)$$

$$Ac_{i,e} = \frac{A_{i,e}}{m_{minta}} \quad (8.2.1.3)$$

Ahol:

- $A_{i,e}$ – az i-edik radionuklid e-edik energiájához tartozó aktivitás [Bq]
- cps_{minta} – a mintából származó beütések száma [cps]
- $cps_{háttér}$ – a háttérből származó beütések száma [cps]

- $k_{i,\gamma}$ – az i -edik izotóphoz tartozó gamma gyakoriság
- $\eta_{i,e}$ – az i -edik radionuklid e -edik energiájához tartozó számlálási hatások
- $A_{C_{i,e}}$ – az i -edik radionuklid e -edik energiájához tartozó aktivitás-koncentráció [Bq/kg]
- m_{minta} – a minta tömege [kg].

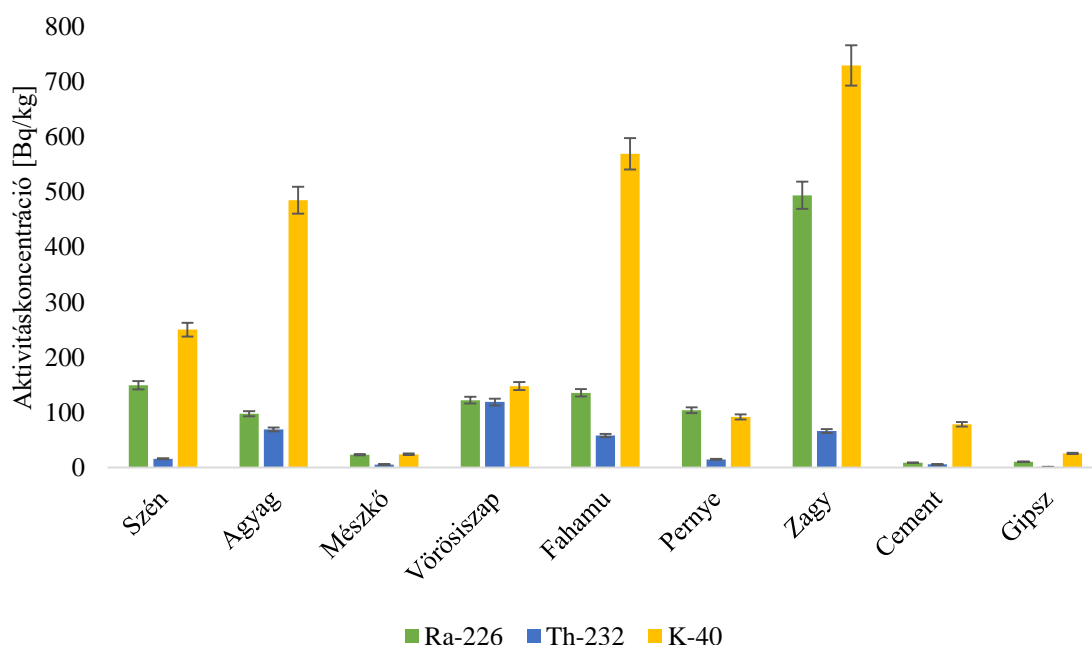
Eredmények és következtetések

9. NORM anyagok építőiparban való alkalmazhatósága

A NORM anyagok építőiparban való alkalmazhatósága vizsgálata során elengedhetetlen az alkalmazni kívánt anyagok radionalitikai vizsgálata. A kapott eredmények alapján következtetéseket vonhatunk le az adott anyag alkalmazhatóságáról azáltal, hogy meghatározzuk az anyagokból származó többletdózis mértékét.

9.1. Gamma-spektrometriai eredmények

Az kísérlet során alkalmazott NORM anyagok (szén, agyag, mészkő, vörösiszap, fahamu, pernye, zagy, cement, gipsz) Ra-226, Th-232, valamint K-40 aktivitáskonzentrációját félvezető gamma-spektrométer segítségével határoztam meg. A vizsgált minták aktivitáskonzentrációja Ra-226 esetében $9,0 \pm 0,6$ - 494 ± 25 Bq/kg, Th-232 esetében $1,0 \pm 0,1$ - 119 ± 8 Bq/kg, valamint K-40 esetében 24 ± 1 - 730 ± 28 Bq/kg között volt (21. ábra).



21. ábra: Gamma-spektrometriai mérések során kapott Ra-226, Th-232 és K-40 aktivitáskonzentráció értékek [Bq/kg]

A kapott eredményeket összehasonlítottam a szakirodalomban található ugyanezen anyagokra vonatkozó aktivitáskoncentráció értékekkel és megállapítható, hogy a mérési eredményeink megfelelnek az irodalomban talált értékeknek (16. táblázat).

16. táblázat: Mérési eredmények összehasonlítása az irodalomban található értékekkel, zárójelben láthatóak a saját mérési eredmények.

Minta neve		Ra-226 [Bq/kg]	Th-232 [Bq/kg]	K-40 [Bq/kg]	
Elsődleges nyersanyag	Szén	68–1391 (149)	14–100 (16)	200–500 (250)	[107]
	Agyag	29–316 (98)	30–537 (69)	412–2521 (485)	[107]
	Mészke	3–79 (23)	1–19 (6)	5–18 (24)	[107]
Ipari melléktermék	Vörösiszap	97–301 (122)	118–539 (119)	50–215 (148)	[107]
	Fahamu	75–815 (136)	37–140 (58)	157–900 (569)	[107]
	Pernye	15–336 (104)	1–152 (15)	20–786 (92)	[107]
	Zagy	87–2668 (494)	20–89 (66)	226–781 (730)	[108]
Építőanyag	Cement	4–422 (9)	3–266 (6)	4–846 (78)	[108]
	Gipsz	1–70 (11)	1–100 (1)	5–279 (26)	[109]

Az ICRP 112 ajánlása alapján az ezen anyagokra vonatkozó világátlag érték Ra-226, Th-232 és K-40 esetén rendre 50, 50 és 500 Bq/kg [52]. Az általam kapott értékek számos esetben meghaladják az Ra-226, Th-232, valamint a K-40 re vonatkozó világátlag értékeket.

Ra-226, valamint K-40 esetében a legkiemelkedőbb értékeket a zagy minták esetén mértem szám szerint, 494, valamint 730 Bq/kg-ot. Th-232 esetében pedig a legmagasabb aktivitáskoncentráció, -119 Bq/kg-os érték- a vörösiszap minták esetében mérhető.

Dolgozatom célja, hogy olyan NORM anyagokat tartalmazó építőanyagokat állítsak elő, amelyek sugárvédelmi szempontból nem jelentenek többlet kockázatot az emberi szervezet számára. Ezt figyelembe véve, azon minták anyagából készült építőanyagok esetében, ahol a Ra-226 aktivitáskoncentrációja kiemelkedően magas, -mint például a zagy, a vörösiszap és a fahamu-, számolni kell az esetleges többlet dózisterheléssel, amihez a belőlük kiexhalálódó radon nagymértékben hozzájárul. Ez természetesen nem azt jelenti, hogy ezek az anyagok egyáltalán nem használhatóak fel, csupán csak megfelelő arányban kell őket hozzákeverni az építőanyaghoz.

Az általam modellezett építőanyagok Ra-226, Th-232 és K-40 aktivitáskoncentrációi, I-index, valamint rádium ekvivalens értékei a 17. táblázatban találhatóak:

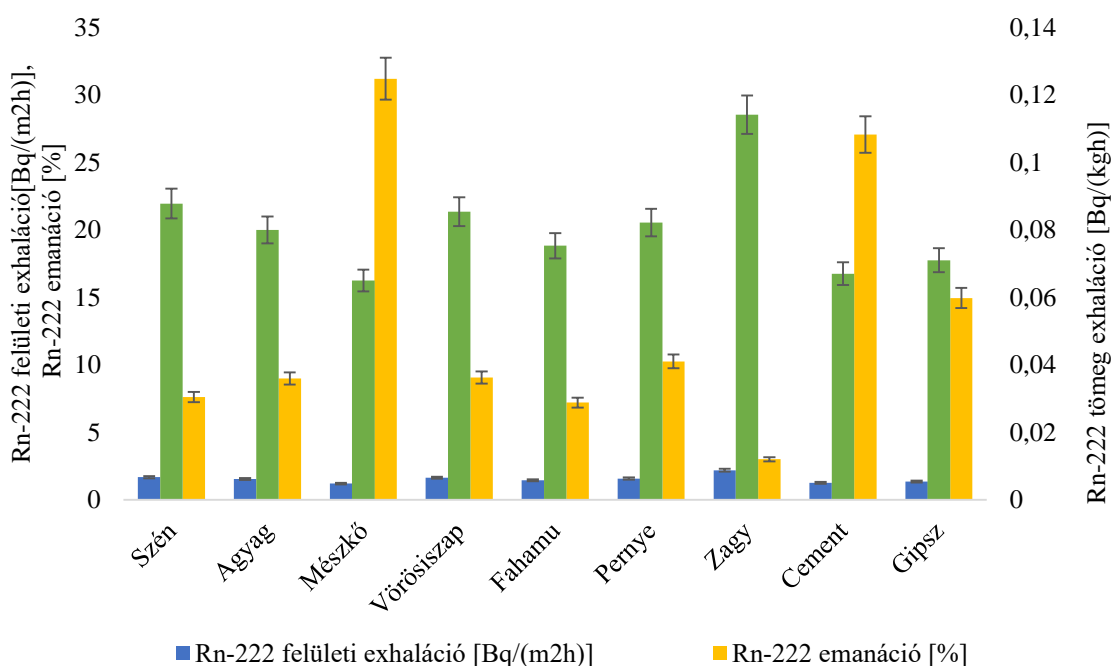
17. táblázat: Aktivitáskonzentráció, I-index, valamint rádium ekvivalens értékek

	Aktivitáskonzentráció [Bq/kg]			I-index	Rádium ekvivalens [Bq/kg]
	Ra-226	Th-232	K-40		
1_Minta	9	6	78	0,09	23
2_Minta	122	199	148	1,45	412
3_Minta	65	102	111	0,77	217
4_Minta	130	21	241	0,62	178
5_Minta	136	58	569	0,93	260
6_Minta	72	32	323	0,51	142
7_Minta	69	67	218	0,64	180
8_Minta	154	67	320	0,96	272
9_Minta	67	104	132	0,79	223
10_Minta	20	25	85	0,31	85
11_Minta	14	15	80	0,15	41
12_Minta	33	9	11	0,19	54

A próbatestek aktivitáskonzentrációja Ra-226 esetében $9\pm 0,8$ - 154 ± 12 Bq/kg, a Th-232 $6\pm 0,4$ - 199 ± 16 Bq/kg közötti, a K-40 aktivitáskonzentráció értékek pedig $11\pm 0,7$ - 569 ± 38 Bq/kg közötti. A legmagasabb I-index, valamint rádium ekvivalens érték a 2_Mintához, a legalacsonyabb pedig az 1_Mintához tartozik.

9.2. Radonemanáció és -exhaláció eredmények

Az akkumulációs kamrás mérések során meghatároztam a minták Rn-222 aktivitáskoncentrációját, valamint emanációs értékét. A tömeg exhalációs értékek $0,007 \pm 0,004 - 0,11 \pm 0,007$ Bq/(kg h) közötti, a felületi exhalációs értékek $1 \pm 0,096 - 2 \pm 0,15$ Bq/(m²h) közötti, míg az emanációs értékek pedig 3 – 24% közöttiek (22. ábra). A legmagasabb exhalációs érték a zagy esetében volt mérhető, míg a legalacsonyabb értéket a mészkő minta esetében kaptam.



22. ábra: A vizsgált minták Rn-222 exhalációs, valamint emanációs értékei

A kapott értékek jól tükrözik, hogy az anyag szerkezete mellett a benne található Ra-226 nagymértékben befolyásolja a kiexhalálódó radon mennyiségét, ezt bizonyítják a Pearson korrelációs vizsgálatok során kapott eredmények.

Pearson korrelációs statisztikai elemzések során megállapítható, hogy a Ra-226 aktivitáskoncentrációja, valamint az Rn-222 exhalációs értéke és a sugárvédelmi szempontból fontos paraméterek között pozitív korreláció van (18. táblázat), emiatt a magas Ra-226 aktivitáskoncentrációval rendelkező építőipari alapanyagoknak kiemelt figyelmet kell szentelni.

18. táblázat: Pearson korrelációs értékek vizsgálata

	Ra-226 aktivitás- koncentráció [Bq/kg]	Rn-222 tömeg exhaláció [Bq/(kgh)]	Rn-222 felületi exhaláció [Bq/(m²h)]	I- index	Éves effektív dózis [mSv/év]
Ra-226 aktivitáskoncentráció [Bq/kg]	1				
Rn-222 tömeg exhaláció [Bq/(kgh)]	0.94	1			
Rn-222 felületi exhaláció [Bq/(m²h)]	0.94	0.97	1		
I-index	0.95	0.94	0.92	1	
Éves effektív dózis [mSv/év]	0.95	0.94	0.92	0.99	1

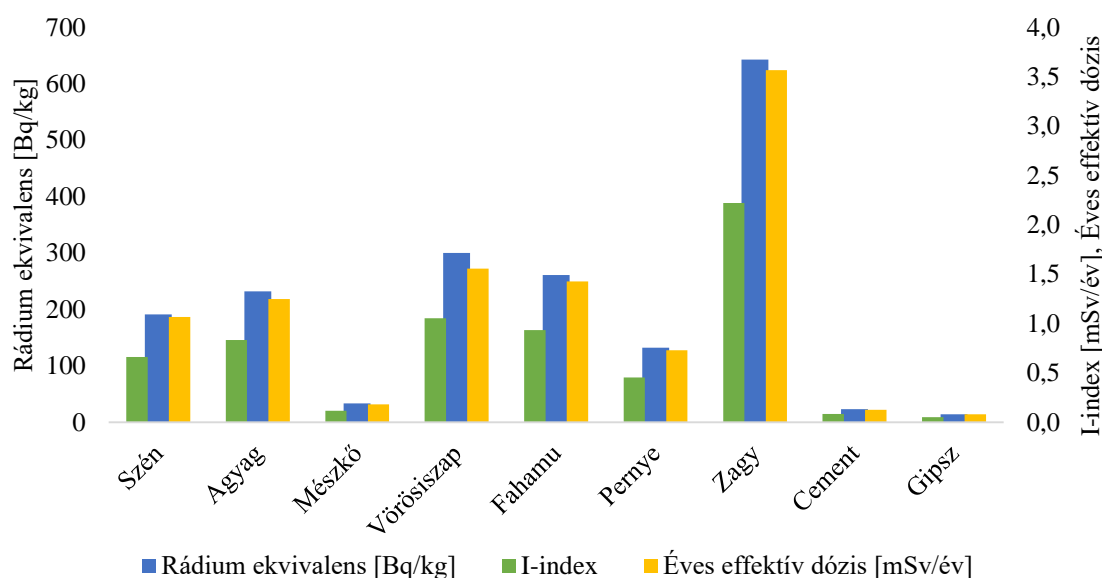
A kapott eredmények azzal magyarázhatók, hogy a vizsgált minták nem lettek alávetve különböző pórusokat záró vagy feltáró kezeléseknek. A Rn-222 exhalációt valamint emanációt befolyásoló tényezők közé soroljuk a szemcseméretet, a szemcsék eloszlását, a minta nedvességtartalmát, a kezdeti Ra-226 koncentrációt, valamint a vizsgált minta vastagságát. Kutatások bebizonyították, hogy különféle kezelési módszerek, mint például a hőkezelés, befolyásolhatja a minta exhalációs, valamint emanációs értékét [110-111].

9.3. *I-index és építőanyag minősítés meghatározás eredményei*

A 2/2022 (IV. 29) OAH rendelet és a 2013/59/EURATOM irányelv alapján meghatároztam a vizsgált anyagok I-index, valamint rádium ekvivalens értékét (24. ábra).

A kapott értékek 0,05 és 2,2 között változnak, 0,7-es átlagértékkel. A vizsgált minták esetén a kapott I-index értéke a zagy, valamint a vörösiszap esetén haladta meg az előírt legfeljebb 1-es index értéket, a még szigorúbb 0,5-ös értéknél pedig csupán csak három minta, név szerint a cement, a zagy, valamint a gipszminták esetén kaptam kisebb I-index értéket. Azon anyagok alkalmazása esetén, amelyeknél az I-index értéke meghaladja az ajánlott értéket, az alkalmazásukból származó esetleges többletdózis várhatóan meghaladja az 1 mSv/év értéket. A gipsz, cement, valamint mészkő minták esetében az éves effektív dózis nem haladja meg a 0,3 mSv/éves értéket. Azon anyagok, amelyek I-index értéke kisebb, mint 1, különösebb intézkedések nélkül alkalmazhatóak építőanyagok, például téglák gyártására. Azon anyagok esetében, amelyek I-index értéke meghaladja az ajánlott értéket, az építőiparban való alkalmazás kritériumokhoz kötött. Ilyen kritérium lehet például az alkalmazott anyag mennyisége, hőkezelési eljárás beiktatása (10. táblázat).

A minták rádium ekvivalens értékei 14 - 642 Bq/kg között változnak, átlag értékük pedig 203 Bq/kg. (23. ábra). Mérési eredményeink alapján egy minta rádium ekvivalens értéke haladta meg ezt a határértéket, ez pedig a zagy, melynek értéke 642 Bq/kg. Azon minták esetében, amelyek radionuklid koncentrációja meghaladja az ajánlott határértéket, az éves effektív dózis értéke meghaladja az 1 mSv/éves limitet, így ezen anyagok alkalmazása, az épületekben lakók számára a jelenlegi szabályozások értelmében, nem megengedhető egészségkárosító kockázatot jelent.



23. ábra: Sugárvédelmi szempontból jelentős paraméterek

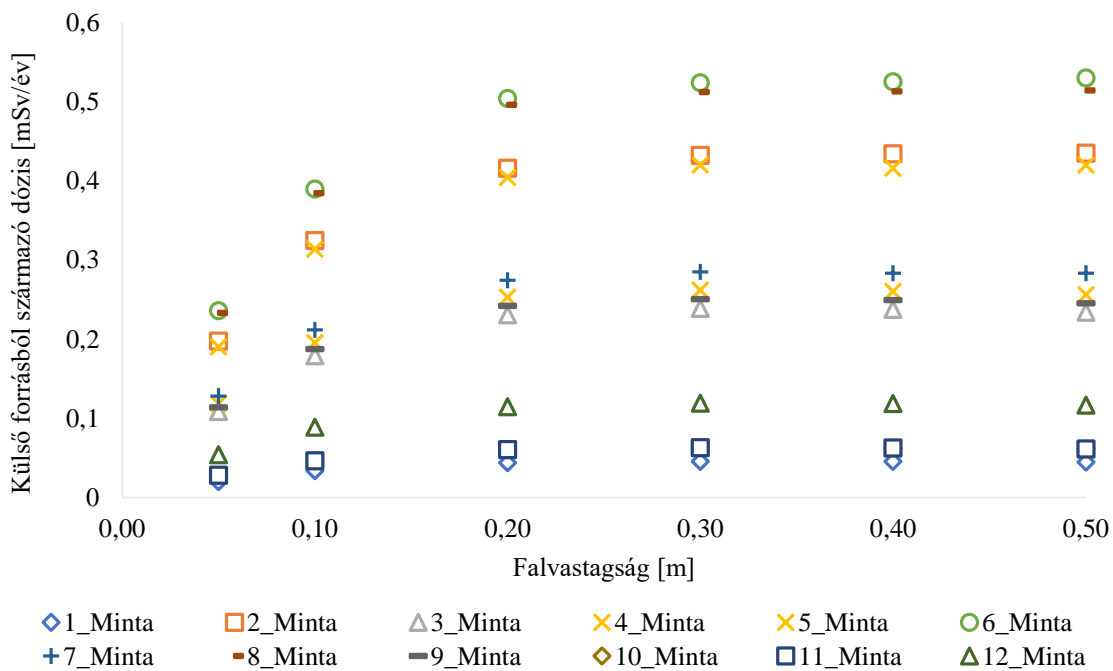
Mint említettem az ICRP ajánlása alapján az éves effektív dózis értéke nem haladhatja meg az 1 mSv/éves értéket. Az éves effektív dózis értékek 0,08 - 3,6 mSv/év között változnak 1,1 mSv/év-es átlagértékkel. (23. ábra). A legmagasabb érték a zagy esetében mérhető, a legalacsonyabb pedig a gipsz esetében.

9.4. RESRAD-BUILD modellezés eredményei

A RESRAD-BUILD modellezések segítségével összefüggéseket kerestem a lakóépületek változó falvastagsága, illetve a változó szobaméret és az azokból származó többletdózisok között. Minkét esetben vizsgáltam a gamma-sugárzásból származó és a radonból származó többletdózis változás mértékét.

9.4.1. Változó falvastagság és a többletdózis közötti összefüggések vizsgálata

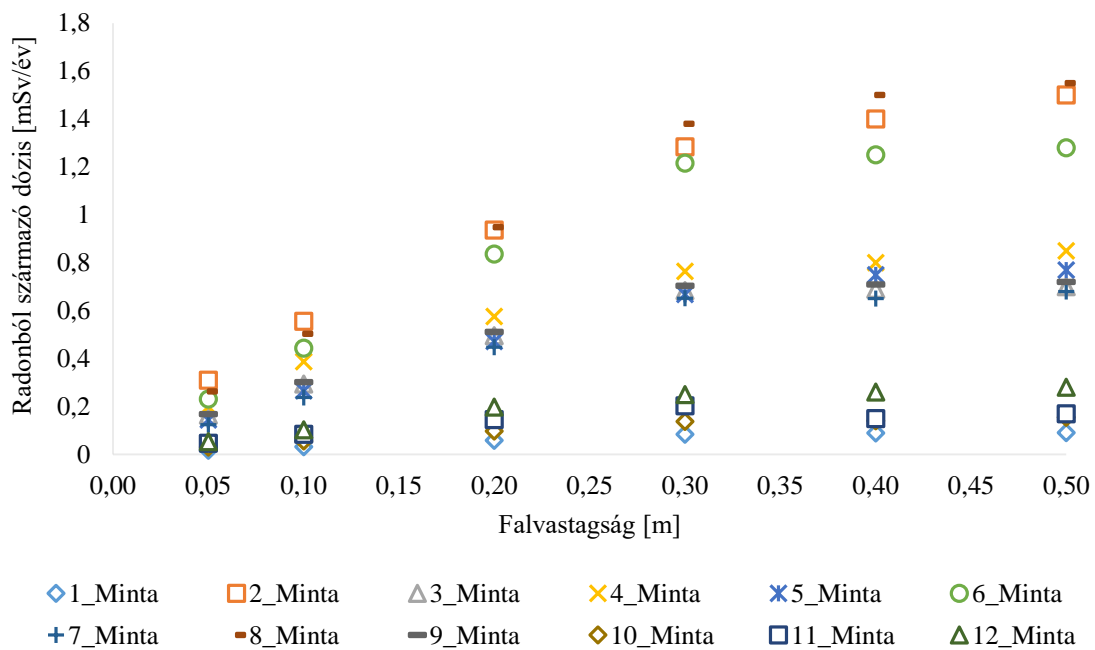
Elsőként megvizsgáltam a különböző falvastagságok és a külső gamma-dózis, valamint a belső radonból eredő sugárterhelés közötti kapcsolatot. A 24. ábrán láthatjuk, hogy az építőanyagból származó többlet sugárterhelés nagysága 0,3 m-es falvastagságig egyenletesen növekszik, majd ezt követően a kapott értékek alapján láthatjuk, hogy a többletdózis mértéke szinte egyensúlyi állapot felé tart, valójában azonban egy nagyon lassú és kicsi radionuklid koncentrációnövekedés következik be. A jelenség azzal magyarázható, hogy bizonyos falvastagság, esetünkben 0,3 m falvastagság felett a radionuklidok sokkal nehezebben tudnak kijutni az építőanyag pórusaiból, ezáltal az nem tudnak olyan nagymértékben hozzájárulni az általuk okozott többletdózishoz.



24. ábra: Külső gamma sugárzástól származó effektív dózis-teljesítmény változása a falvastagság függvényében a szoba közepén álló személy esetében.

A radon esetében szintén megfigyelhető, hogy amint a falvastagság eléri a 0,3 m-es falvastagságot, az exhaláló radonból származó többletdózis a külső gamma dózishoz hasonlóan lassú növekedésbe kezd, azonban nem olyan mértékben mint az előbbi esetben. Ez a jelenség azzal magyarázható, hogy a radon könnyen exhalálódik az építőanyag mártixának felső téregeiből, valamint könnyedén akkumulálódhat a zárt terekben (25. ábra).

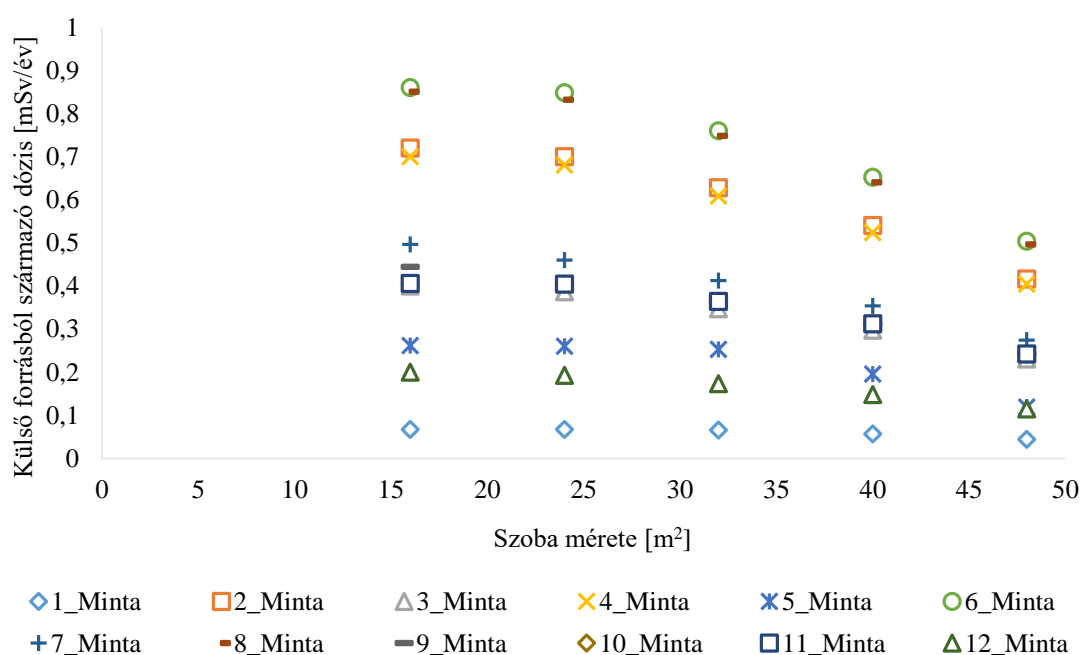
Azt, hogy a radon egy adott falból milyen mennyiségben képes exhalálódni, nagy mértékben függ a fal anyagában lejátszódó diffúziós mechanizmusoktól, azaz a radon anyagból való kijutásának úthosszától, a diffúziós úthossztól, valamint a diffúziós rétegvastagságtól. A diffúziós úthosszt befolyásolja az anyag minősége, nedvességtartalma, porozitása, esetleges repedezettsége. Amennyiben az adott anyagból való kijutáshoz szükséges diffúziós úthossz kicsi, a pórusrétegben emanálódott összes radon képes kiexhalálódni az anyagból, ezzel megnövelve az építőanyagokból származó többletdózis mennyiségét.



25. ábra: A radonból származó effektív dózis-teljesítmény változása a falvastagság függvényében a szoba közepén álló személy esetében.

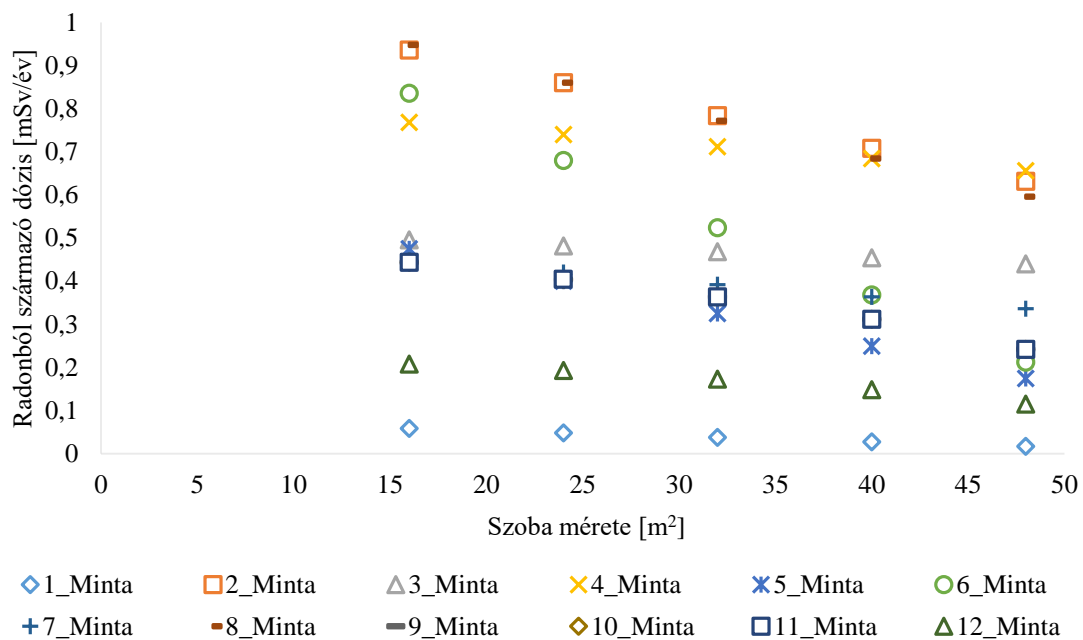
9.4.2. Változó szobaméret és a többletdózis közötti összefüggések vizsgálata

A továbbiakban megvizsgáltam a kapott dózis, valamint a szobák méreterének változása közötti összefüggést. A szobák méreterét 16 és 48 m² között változtattam öt lépésben, a falvastagság pedig ebben az esetben változatlanul 0,3 m maradt. Azáltal, hogy megnövelem a szobák légtérét, - bár igaz, hogy közben megnövekszik a falfelület nagysága is -, a falból kijutó gamma sugárzokból eredő többletdózis folyamatosan csökken, hiszen a szoba közepén álló receptor és a falak közötti távolság is folyamatosan növekszik. (26. ábra).



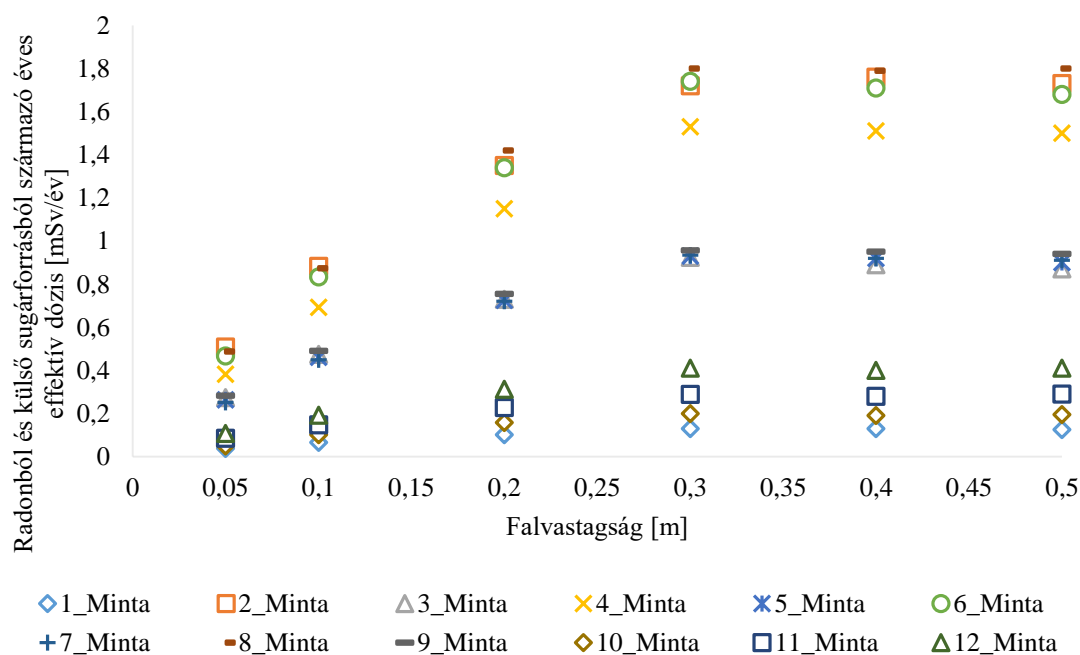
26. ábra: Külső sugárforrásból származó effektív dózis-teljesítmény változása a szoba méretének függvényében a szoba közepén álló személy esetében.

A radonból származó többletdózis estén szintén megfigyelhetjük, hogy a belőle származó többletdózis mértéke csökken, hiszen a szoba légtérének növekedésével a radon egyre nagyobb és nagyobb térfogatban oszlik szét (27. ábra).



27. ábra: Radonból származó effektív dózis-teljesítmény változása a szoba méretének függvényében a szoba közepén álló személy esetében

Végül megvizsgáltam a radonból és külső sugárforrásból származó összes effektív dózis, valamint a falvastagság közötti összefüggést. Az éves effektív dózis esetében ugyanaz a jelenség figyelhető meg, mint az első esetben, a fal vastagság növekedésével: 0,3 m-ig az éves effektív dózis mértéke folyamatosan növekszik, majd egy egyensúly közeli állapot áll be (28. ábra). Vizsgálataim során megállapítottam, hogy az építőanyagok összetétele nagymértékben befolyásolja a kapott dózis értékét. Esetemben az 1, 10, 11, valamint 12-es minta esetében megállapítható, hogy az éves effektív dózis mértéke nem haladja meg az előírt 1 mSv/év-es effektív dózist.



28. ábra: Radonból és külső sugárforrásból származó effektív dózis-teljesítmény változása a falvastagság függvényében a szoba közepén álló személy esetében.

A kapott eredmények alapján elmondható, hogy a különböző ipari melléktermékek egy meghatározható maximális mennyiségben alkalmazhatóak építőanyagok gyártása során - amennyiben megfelelő arányban adalékanyagként használjuk fel őket a hagyományos építőanyagokhoz - anélkül, hogy bármilyen többlet kockázatot jelentsenek az épületben tartzkodók egészsége szempontjából. Néhány esetben megfigyelhető (10, 11, valamint a 12-es minták) emelkedettebb Ra-226, Th-232 valamint K-40 aktivitáskoncentráció, és a kapott I-index, valamint radium eqvalens értékek alapján sugárvédelmi szempontból ezek alkalmazása kockázatosnak tekinthető.

10. Radioaktív hulladékok beágyazásának vizsgálata

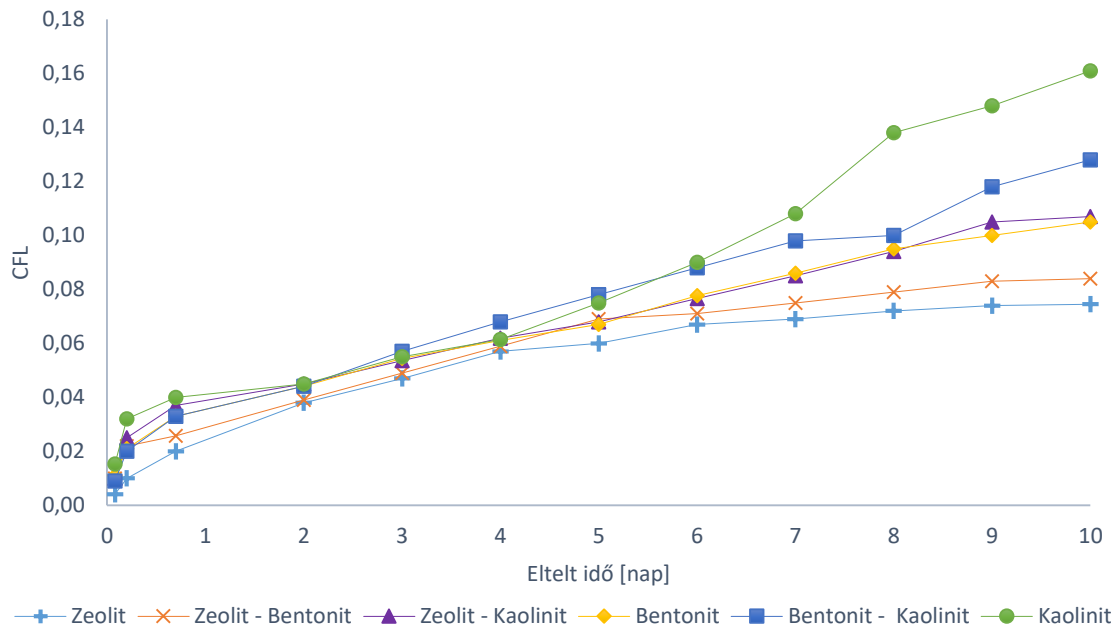
A folyékony radioaktív hulladékok geopolimerekbe történő beágyazásának fő célja, hogy laboratóriumi vizsgálataim során megtaláljam azt a megfelelő mátrixkeveréket, amely képes lecsökkenteni a Cs-izotópok kioldódását az anyagból. Ennek érdekében a laboratóriumi munkámat három különböző, azonban egymásra épülő fázisra bontottam (I., II. és III. vizsgálatsorozat). A vizsgálatokhoz tartozó eredményeket az alábbiakban mutatom be.

10.1. I. vizsgálatsorozat eredményei

A szakirodalom erre vonatkozó részének tanulmányozását követően, kiválasztottam azt a három számomra könnyen elérhető agyagásványt, amely kiemelkedő eredményeket mutatott a folyékony radioaktív hulladékokban található radionuklidok immobilizációjának csökkentése érdekében. Ezek a zeolit, a bentonit és a kaolinit.

Első lépésként 1:1 arányba kevertem össze az összetevőket az 13. táblázatban látható módon (lásd 8.1 fejezet), majd az így kapott próbatestekkel kezdtem meg a szabvány szerinti kioldódási vizsgálatokat.

A kioldódásvizsgálatok során keletkezett oldatok gamma-spektrometriai vizsgálatának eredményeként megkaptam a próbatestekből kioldódott Cs-137 aktivitáskoncentrációját, amely alapján meghatároztam a próbatestekből kioldódó Cs-137 CFL értékeket a 8.2 fejezetben meghatározott módom. A kioldódásvizsgálatokból származó CFL értékeket az idő függvényében a 29. ábrán láthatjuk.



29. ábra: Az 1. vizsgálat során kapott CFL értékek változásának ábrázolása idő függvényében.

Az eredmények alapján megállapítható, hogy a 10 napos kioldódási vizsgálatok során a kioldódott Cs-137 mennyisége a zeolitot és cementet 1:1 arányban, valamint a zeolit – bentonit – cementet 1:1:1 arányban tartalmazó geopolimerben esetében volt a legkisebb. A zeolit – cement próbatest esetében a kioldódás mértéke 9,8 % volt, míg a zeolitot, bentonitot és cementet tartalmazó próbatestek esetén a kioldódás mértéke 10,1 %-os volt. A legmagasabb kioldódási értéket a kaolin – cement 1:1 arányú keverékét tartalmazó próbatestben mértem, ebben az esetben a kioldódás mértéke 17,4 % volt. A kaolin nagy kioldódási arány a kaolin szerkezetéből adódik, ugyanis az illithez hasonlóan a kaolin is egy réteges szerkezetű filo-szilikát, melyben a Cs-ionok abszorpciója a kristályszerkezetből adódóan nem olyan nagy, mint a montmorillonit tartalmú társaiban. A kapott eredmények alapján láthatjuk, hogy a zeolit – cement, valamint a zeolit – bentonit minta CFL értéke folyamatosan növekszik, majd a 7. napot követően a kioldódás mértéke már sokkal kisebb arányú növekedést mutat a többi mintával szemben, ahol folyamatos növekedést láthatunk.

A kioldódási vizsgálatok kezdeti szakaszában, azaz az első pár napban, nem csupán a geopolimerbe beágyazott Cs-137 izotópok oldódnak ki, hanem a próbatestek felszínén található Cs-137 izotópok is. Ennek következtében tapasztalhatunk a kezdeti szakaszban erőteljesebb CFL érték növekedést. Amint a felszínen található Cs-137 már teljes mértékben kioldódott, már csak a geopolimer belsejében található Cs-137 kioldódása befolyásolja a kapott értékeket. A kioldódott Cs-137 mennyiségét emellett befolyásolják a

mintaelőkészítés során a próbatestekben esetlegesen keletkezett apró mikrorepedések, melyek következtében a kioldódás mértéke megnövekedhetett.

10.2. II. vizsgálsorozat eredményei

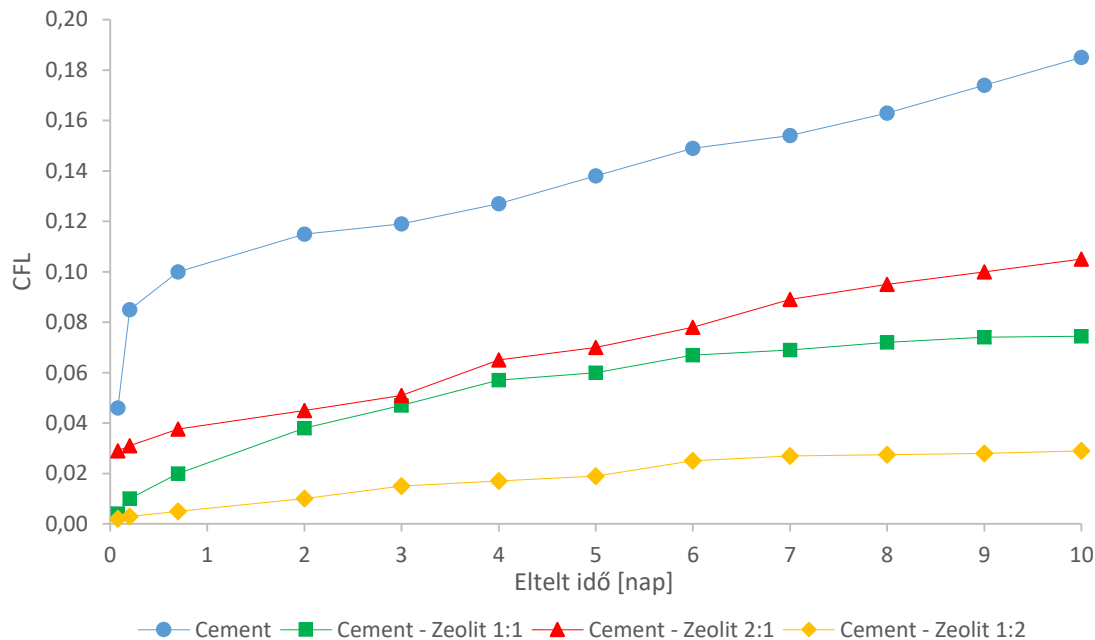
Mivel az I. vizsgálsorozat esetében a zeolitból készült próbatest esetében kaptam a legkedvezőbb CFL értéket, a II. vizsgálsorozat során a további próbatestek készítéséhez zeolit, valamint cement különböző arányú keveréséből készítettem próbatesteket

A Cs-137 izotópok kioldódása a cementből diffúzió során történik, ugyanis a cézium kémiai és szorpciós kötődése a cementhez igen gyenge. Emellett a cézium egy része a pórusvízbe kerül, ahonnan könnyedén kimosódhat vízzel való érintkezés során.

Ahhoz, hogy kellőképpen le lehessen csökkenteni a cézium ionok kijutását a mátrixból, különféle adalékanyagokat kell alkalmazni, a mi esetünkben zeolitot. Az adalékanyag minőségétől és mennyiségétől függően csökkenthető a kioldódás mértéke. A zeolitban abszorbeálódott cézium ionok, ioncsere folyamatok következtében kicserélődik a cementben található kalcium ionokkal, majd diffúzió következtében a cézium kijuthat a mátrixból a környezetbe. Azt tehát, hogy a cézium milyen gyorsasággal jut ki a mátrixból, a környezet, az ioncsere, valamint a diffúzió sebessége határozza meg. Az ioncsere folyamatát lassíthatjuk azáltal, hogy megnöveljük a mátrixok adalékanyag tartalmát, aminek következtében az agyagásványok képesek jobban megkötni a kalcium-hidroxid ionokat is, így azok nem tudják olyan nagymértékben kiszorítani a cézium ionokat a mátrix szerkezetéből, tehát számottevően kevesebb cézium fog kioldódni a mátrixból. Ezt a folyamatot a cementben található kalcium ionok mellett az oldószerben található kalcium ionok mennyisége is befolyásolhatja, hiszen, ha az oldószer egy kalciumban gazdag anyag, a benne lévő kalcium ionok szintén ki tudják szorítani a cézium ionokat, ezzel pedig ismételt megnövelve azok mátrixból való kijutásának a valószínűségét. Emiatt választottam oldószernek a desztillált vizet, hiszen az nem tudja befolyásolni a próbatestekben lejátszódó ioncsérés folyamatokat [112].

A kioldódásvizsgálatok során kapott eredmények a fent említ ioncsérés folyamatoknak megfelelően alakultak. Láthatjuk, hogy a cement – zeolit 1:1, valamint a cement – zeolit 1:2 minták esetében a kioldódott cézium mennyisége kisebb, mint azokból a próbatestekből, ahol a cement önmagában vagy a zeolithoz képest nagyobb mennyiségben van jelen. A zeolitot és cementet 1:1 arányban tartalmazó próbatestekből kioldódott Cs-137 mértéke 9,8 %, a zeolitot és cementet 2:1 arányban tartalmazó próbatestekből történő

kioldódás mértéke már csak 8,3 %, ezzel szemben a cementet, illetve a cementet és zeolitot 2:1 arányban tartalmazó próbatestek esetén a kioldódott Cs-137 mértéke 17,5, illetve 16,2 % (30. ábra).



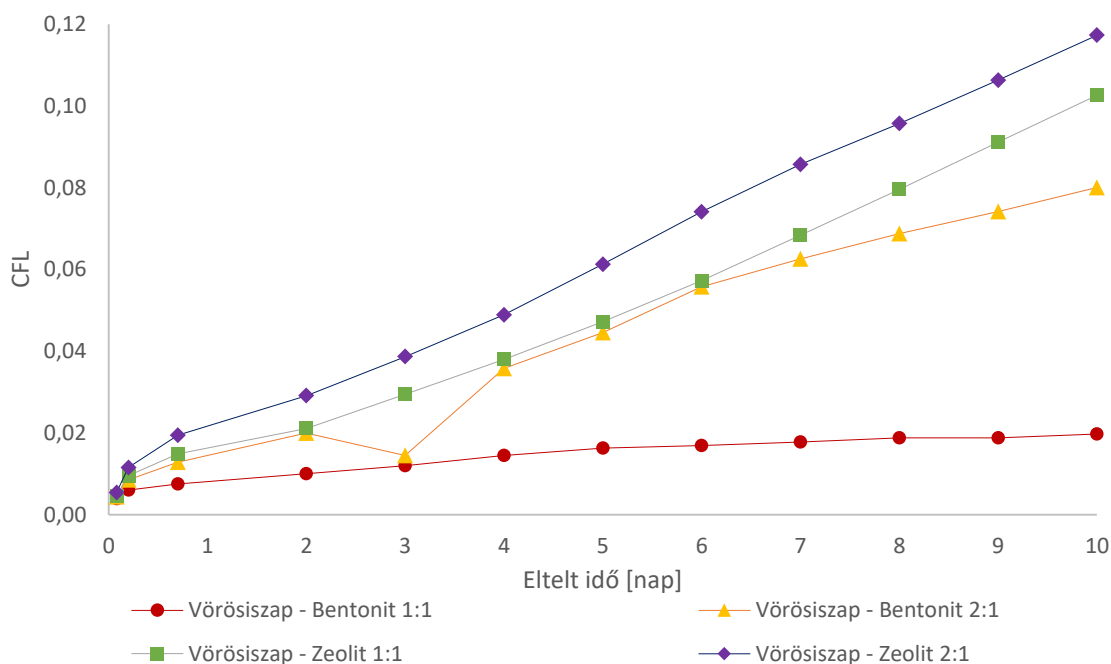
30. ábra: A 2. vizsgálat során kapott CFL értékek változásának ábrázolása idő függvényében

10.3. III. vizsgálat sorozat eredményei

Az utolsó kísérlet sorozatban sor került NORM anyagok felhasználására is kioldódási vizsgálatok során. A kísérlethez választott NORM anyag a vörösiszap. Az előző vizsgálatokból kiindulva ebben az esetben a két legjobb kioldódási értéket mutató adalékanyagot használtam fel, ez pedig a bentonit és a zeolit.

Az előző vizsgálatok során kapott eredmények alapján arra az eredményre számíthatunk, miszerint a zeolitot tartalmazó geopolimer minták kioldódás értékei kedvezőbbek lesznek a bentonitot tartalmazó próbatestekkel szemben. Azonban a kioldódási vizsgálatok során kapott eredmények alapján a bentonitot tartalmazó próbatestek bizonyultak jobbnak. A bentonitot és vörösiszapot 1:1, valamint 1:2 arányban tartalmazó próbatestekből történő kioldódás mértéke 5,9, valamint 8,04 % volt, míg a zeolitot és vörösiszapot 1:1, illetve 1:2 arányban tartalmazó próbatestek esetén a Cs-137 kioldódásának mértéke 10,2, illetve 11,73 % volt (31. ábra). A kapott eredmények alapján elmondhatjuk, hogy az ioncserés folyamatokat számos dolog befolyásolhatja. Ebben az esetben a bentonit összetételéből eredő kissé lúgos kémhatás, valamint a vörösiszap Si/Al aránya kedvező körülményeket

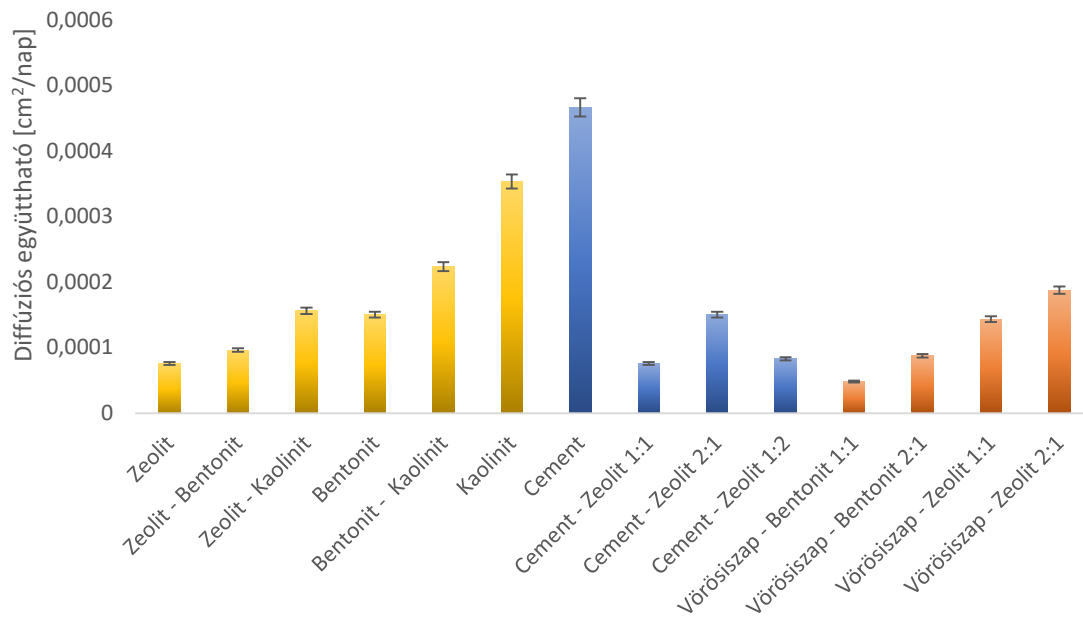
teremtett az adszorpciós folyamatoknak, melyek következtében a cézium ionok sokkal jobban megkötődjenek a bentonitot tartalmazó próbatestek mátrixában, mint a zeolitot tartalmazó próbatestekben. Azonban az is látható, hogy abban az esetben, ha még jobban megnöveljük a minták Al/Si arányát, azzal, hogy egyre több vörösiszapot adagolunk a próbatestekhez a kioldódás mértéke megnövekszik. Ezen jelenség azzal magyarázható, hogy a geopolimerek közismerten nagy adszorpciós felülettel rendelkező anyagok, amelyek számos mikropórus található, amelyek döntő szerepet játszanak a cézium ionok adszorpciójában. Azáltal, hogy a geopolimerekhez a szintézisú során alumino-szilikátokat adunk, szerkezetük tömörebbé válik, ami szerkezeti szempontból pozitív hatással van a geopolimerekre hiszen sokkal ellenállóbbak lesznek. Azonban abban az esetben, ha az alumino-szilikátok mennyiségét egy bizonyos határ fölé emeljük a szintetizálás során a kapott geopolimer szerkezete már túlzottan tömör lesz, melynek következtében az adszorpció során létfontosságú szerepet betöltő mikropórusok mérete csökken, ezáltal pedig csökken a geopolimerek cézium megkötő képessége is [113].



31. ábra: A 3. vizsgálat során kapott CFL értékek változásának ábrázolása idő függvényében

Ezt követően meghatároztam a diffúziós együtthatók értékét minden minta esetében. A diffúzió akkor jelentős, amikor az adott ion semmilyen módon nem kötődik a mátrix

szerkezetéhet. Ez a jelenség figyelhető meg a kaolinit és cementet 1:1 arányban, valamint a csak sima cementet tartalmazó próbatestek esetében. Azokban a próbatestekben, ahol az adalékanyagoknak köszönhetően jelentősebb volt az ioncsere mértéke a diffúziós sebesség jelentős mértékben lecsökkent. A legkedvezőbb diffúziós együttható értéket a vörösiszapot és bentonitot, valamint a cementet és zeolitot 1:1 arányban tartalmazó minták esetében figyelhető meg (32. ábra).



32. ábra: A vizsgálatok során kapott diffúziós együttható értékek ábrázolása

Összefoglalás

Jelen munkám céljával a különféle ipari folyamatok következtében keletkező NORM anyagokat tartalmazó melléktermékek építőiparban, valamint a folyékony radioaktív hulladékok kezelése terén történő felhasználási lehetőségének vizsgálatát tűztem ki.

Munkámat a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszékén végeztem, ahol különféle ipari mellékterméket, valamint agyagásványokat vizsgáltam meg különféle radiológiai módszerekkel.

Kutatómunkám során két különböző újra felhasználási módszer lehetséges megvalósításait vizsgáltam. A folyékony radioaktív hulladékok kondicionálása esetén, a geopolimerekbe történő beágyazás témakörét vizsgáltam meg és azon belül is olyan Cs-137 tartalmú geopolimer próbatesteket készítettem, melyek különböző arányban tartalmaztak agyagásványokat, valamint NORM anyagokat. Vizsgálatom célja a próbatestekben található cézium ionok immobilizációjának vizsgálata volt az ASTM C 1308-08 szabvány alkalmazásával. A kioldódási folyamatok segítségével megállapítható, hogy azon próbatestek bizonyultak cézium ion immobilizációs szempontból megfelelőnek melyek agyagásványként zeolitot tartalmaztak, ugyanis ebben az esetben a kioldódott cézium ionok mennyisége kevesebb volt, mint 10%. A kioldódási vizsgálatokat folytatva megvizsgáltam a NORM anyagok alkalmazási lehetőségeit, ebben az esetben pedig a vörösiszap bizonyult megfelelőnek. Az eredmények alapján elmondható, hogy a bentonitot, mint agyagásványt és a vörösiszapot tartalmazó próbatestek cézium ion immobilizációs képessége 5,9 – 8,4% volt keverési aránytól függően.

Jelen dolgozat második felében különféle ipari melléktermékeket, valamint hagyományos építőanyagokat vizsgáltam építőiparban való alkalmazhatóságuk szempontjából, különös tekintettel a belőlük származó többletdózisra vonatkozóan. A kiválasztott alapanyagok radiológiai vizsgálatát követően, a kapott adatok alapján elvégeztem a minták minősítését az I-index alapján, valamint a RESRAD-BUILD program segítségével kapott adatok alapján következtetéseket vontam le az adott építőanyagból származó többletdózisra vonatkozóan. A modellezés során különböző falvastagságok, valamint különböző szoba térfogatok esetében vizsgáltam az építőanyagból származó többletdózis mértékét -melynek fő forrása a radon. A kapott adatok alapján megállapítható, hogy a kiáramló radon mértéke és ezáltal a kapott dózis mértéke is, a 0,3 m-es falvastagságig folyamatosan növekszik, e

fölött további szignifikáns emelkedés nem figyelhető meg. Mindemellett megállapítható, hogy az újonnan létrehozott építőanyagok alkalmazhatósága erősen függ az építőanyag alapanyagától, valamint annak radionuklid tartamától. A jelen szabályozások mellett nem jelent többlet egészségügyi kockázatot bizonyos agyagok, esetünkben a vörösiszap alkalmazása amennyiben az megfelelő arányában van alkalmazva. Ebben az esetben a legoptimálisabb keverési arány az 5, illetve 10%.

Összességében elmondható, hogy az ipari folyamatok során keletkező, akár NORM tartalmú ipari melléktermékek alkalmazása mind a folyékony radioaktív hulladékok kondicionálása, mind pedig az építőiparban adalékanyagként való alkalmazhatósága szempontjából elfogadható, amennyiben az megfelelő arányban kerül felhasználásra.

Tézispontok

Építőanyag vizsgálatok - NORM anyagok építőiparban való alkalmazhatósága

1. Az építőanyagok vizsgálata során vizsgáltam annak lehetőségét, hogy miként lehetne a NORM anyagokat adalékanyagként alkalmazni az építőanyag gyártás során, anélkül, hogy az abból származó többletdózis meghaladja a jogszabályban előírt értékeket. A félvezető detektoros gamma-spektrometriai adatokat felhasználva meghatároztam a különböző alapanyagok I-index, valamint a Radium ekvivalens értékét, melyek alapján megállapítottam, hogy a legmagasabb 2,2 I-index értékkel, valamint 642 Bq/kg-os rádium ekvivalens értékkel rendelkező zagy mintából származó effektív dózis értéke meghaladja az 1 mSv/év-es jogszabályi előírásokat, ezáltal ezen anyag alkalmazása sugáregészségügyi szempontból korlátozott.
2. Számítógépes szimulációval (RESRAD BUILD) becsültem az építőanyagokból származó sugárterhelés mértékét különböző expozíciós forgatókönyveknek megfelelően. A kapott eredmények alapján meghatároztam, hogy az építőanyagokból származó többletdózis mértéke 0,3 m falvastagságig szignifikánsan emelkedik, ezt követően az emelkedés mértéke csökken.
3. A radiológiai minősítés során megállapítottam a különböző anyagok bekeverési felső korlátját, ami vörösiszap esetében maximálisan 10%-os bekeverési arányt jelent. A vizsgált anyagok megfelelő arányban felhasználva sugárvédelmi szempontból alkalmazhatóak építőipari adalékanyagként, mivel megfelelnek a vonatkozó jogszabályi előírásoknak.

Kioldódásvizsgálatok – Különböző anyagösszetételű próbatestek Cs-ion immobilizációs képességének vizsgálata.

4. A kioldódásvizsgálatok során vizsgáltam annak a lehetőségét, hogy miként lehet a kondicionált radioaktív hulladékokból kioldódó radionuklidok mennyiségét csökkenteni azáltal, hogy a cementhez agyagásványokat, illetve vörösiszapot kevertem. A kioldódásvizsgálatok első szakaszában kapott eredmények alapján megállapítottam, hogy az agyagásványok, nevezetesen zeolit, cementhez való keverésével csökkenteni lehet a kioldódott cézium ionok mennyiségét, hiszen a sima cement esetében a kioldódás mértéke 17,5 % volt, zeolit hozzáadásával ezt az értéket 9,8%-ra, majd pedig további zeolit hozzáadásával ezt a mennyiséget 8,3 %-ra sikerült lecsökkentenem.
5. Ezt követően megvizsgáltam annak lehetőségét, hogy az agyagásványok hozzáadása mellett a vörösiszap hozzáadása miként befolyásolja a kioldódás mértékét. Ebben az esetben megállapítottam, hogy a vörösiszap-bentonit 1:1 arányú keverékéből származó geopolimer esetén a kioldódás mértéke sokkal kisebb, mint a zeolitot tartalmazó próbatest esetében, ugyanis a vörösiszap-bentonit 1:1 arányú keveréséből származó kioldódás mértéke 5,9%, amely a cement mintát tartalmazó kioldódás értékéhez képest 33,7 %-ra csökkent. Ezen módszer segítségével nem csak a kioldódott radionuklidok mennyisége csökkenthető, de az ipari hulladéktárolókban lerakott vörösiszap mennyiségének csökkentésére is megoldást nyújt azáltal, hogy adalékanyagként alkalmazzuk azt.

Theses

Construction material tests - applicability of NORM materials in the construction industry

1. During the examination of building materials, I investigated the possibility of using NORM materials as additives in the production of building materials without the additional dose exceeding the legal limits. Using gamma spectrometry data, I determined the I-index and radium equivalence values of the different raw materials and found that the effective dose from the slurry sample with the highest I-index value of 2.2 and a radium equivalence value of 642 Bq/kg exceeded the legal requirement of 1 mSv/year, thus limiting the use of this material from a radiological health point of view.
2. Using computer simulation (RESRAD BUILD), I estimated the radiation exposure from building materials under different exposure scenarios. Based on the results I found that the rate of excess dose from building materials increases significantly up to a wall thickness of 0.3 m, after which the rate of increase decreases.
3. During the radiological assessment, I established a maximum limit for the incorporation of various substances, which in the case of red mud is a maximum of 10%. The tested materials, when used in the correct proportions, can be used as additives in the construction industry for radiation protection purposes, as they comply with the relevant legal requirements.

Leaching tests - Examination of the Cs-ion immobilization capacity of specimens with different material compositions.

4. In the leaching studies, I investigated the possibility of reducing the amount of radionuclides leached from the conditioned radioactive waste by mixing clay minerals and red mud with cement. Based on the results obtained in the first phase of the leaching tests, I found that mixing clay minerals, namely zeolite, with cement could reduce the amount of caesium ions leached, as the leaching rate for plain cement was 17.5%, adding zeolite reduced this to 9.8% and then adding more zeolite reduced this to 8.3%.

5. I then investigated the possibility that the addition of red mud to the clay minerals might have an effect on the leaching rate. In this case, I found that the leaching rate of the geopolymer from the 1:1 red mud-bentonite mixture was much lower than that of the zeolite-containing sample, as the leaching rate from the 1:1 red mud-bentonite mixture was 5.9%, which was reduced to 33.7% compared to the leaching rate from the cement sample. This method not only reduces the amount of radionuclides leached, but also provides a solution to reducing the amount of red mud deposited in industrial waste landfills by using it as an additive.

Irodalomjegyzék

1. I. Csige, „A ^{222}Rn aktivitásáram-sűrűségének mérése talajfelszínen a gyűjtődényes módszerrel,” *Sugárvédelem*, 1. kötet, 1. szám, pp. 39-43, 2009.
2. R. S. Fediuk, „Mechanical Activation of Construction Binder Materials by Various Mills” *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 125. kötet, 012019. szám, 2016.
3. R. M. Kalombe , V. T. Ojumu, P. C. Eze , S. M. Nyale, J. Kevern és L. F. Petrik, „Fly Ash-Based Geopolymer Building Materials for Green and Sustainable Development” *Materials*, 13. kötet, 24. szám, pp. 5699, 2020.
4. T. Kovács, A. Shahrokhi, Z. Sas, T. Vigh és J. Somlai, „Radon exhalation study of manganese clay residue and usability in brick production” *Journal of Environmental Radioactivity*, 168. kötet, pp. 15-20, 2017.
5. T. Kovács, G. Szeiler, F. Fábrián, R. Kardos, A. Gregoric és J. Vaupotic, „Systematic survey of natural radioactivity of soil in Slovenia” *Journal of Environmental Radioactivity*, 122. kötet, pp. 70-78, 2013.
6. P. K. Rana, R. R. Dash és R. I. Ganguly, „Geopolymer from Industrial Wastes: A Construction Material for 22nd Century,” in *Advanced Composites for Aerospace, Marine, and Land Applications*, pp. 43-54, .2014.
7. J. Somlai, V. Jobbágy, Z. Gorjánác, N. Kávási és T. Kovács, „Radiation dose from coal slag used as building material in the Transdanubian region of Hungary” 118. kötet, 1. szám, pp. 82-87, 2006.
8. R. Sreekanth, V. Siva és Hannant, „Cement-Based Composites,” in *Comprehensive Composite Materials II*, pp. 379-420, 2018
9. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and effects of ionizing radiation - UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly. with Scientific Annexes, 1. kötet, New York: United Nations, 2000.

10. S. Dardy, D. Hill, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios, H. Baysson, F. Bochicchio, H. Deo, R. Falk, F. Forestiere, 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 és R. Doll, „Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies” *BMJ*, 330. kötet, 7485. szám, pp. 223, 2005.
11. J. Somlai, Z. B. Gorjánác, A. Várhegyi és T. Kovács, „Radon concentration in houses over a closed Hungarian uranium mine” *Science of The Total Environment*, %1. kötet367, 2-3. szám, pp. 653-665,2006.
12. N. Kávási, T. Kovács, C. Németh, T. Szabó, Z. Gorjánác, A. Várhegyi, J. Hakl és J. Somlai, „Difficulties in radon measurements at workplaces” *Radiation Measurements*, 41. kötet, 2. szám, pp. 229-234, 2006.
13. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and effects on ionizing radiation - UNSCEAR 2008 Report, 1. kötet, New York: United Nations, 2010.
14. International Commission on Radiological Protection, Annalsof the ICRP - Occupational Intakes of Radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137, 46. kötet, Sage, 2017.
15. I. Obodovskiy, „Radionuclide Sources of Ionizing Radiation” in *Radiation*, Elsevier, pp. 259-273, 2019.
16. A. Goodarzi, A. Anikin és D. Pearson, „Chapter 33 - Environmental Sources of Ionizing Radiation and Their Health Consequences,” in *Genome Stability*, I. Kovalchuk és O. Kovalchuk, szerk., Academic Press, pp. 569-584, 2016.
17. J. Somlai, Z. I. Benkő, M. Csővári, F. Divós, T. Kovács, G. Pátzay, P. Raics és A. Várhegyi, Sugárvédelem, Veszprém: Pannon Egyetem – Környezetmérnöki Intézet, 2008.
18. Á. Kiss és P. Tasnádi, Környezetfizika, Budapest: Typotex kiadó, 2012.

19. 2/2022. (IV. 29.) OAH rendelet az ionizáló sugárzás elleni védelemről és a kapcsolódó engedélyezési, jelentési és ellenőrzési rendszerről, 2022.
20. Z. Németh, Radiokémiai és izotóptechnikai alapismeretek, Veszprém: Veszprémi Egyetem, 1996.
21. N. Foray, M. Bourguignon és N. Hamada, „Individual response to ionizing radiation” *Mutation Research/Reviews in Mutation Research*, 770. kötet, pp. 369-386, 2016.
22. A. Mehdipour, A. Yousefi-Ahmadipour, D. Kennedy és M. K. Arababadi, „Ionizing radiation and toll like receptors: A systematic review article” *Hum Immunol.*, 82. kötet, 6. szám, pp. 446-454, 2021.
23. M. P. Little, R. Wakeford, J. E. Tawn, S. D. Bouffler és A. Berrington de Gonzalez, „Risks Associated with Low Doses and Low Dose Rates of Ionizing Radiation: Why Linearity May Be (Almost) the Best We Can Do” *Radiology*, 251. kötet, 1. szám, pp. 6-12, 2009.
24. I. Barótfi, Környezettechnika, Mezőgazda Lap- és Könyvkiadó Kft., 2003.
25. K. Faulkner, „Physics for diagnostic radiology” *Br J Radiol*, 85. kötet, 1011. szám, pp. 290, 2012.
26. P. J. Allisy-Roberts és J. Williams, Farris Physics for Medical Imaging, Saunders Ltd, 2007.
27. S. Choudhary, „Deterministic and Stochastic Effects of Radiation” *Cancer Therapy & Oncology International Journal*, 12. kötet, 2. szám, pp. 1-2, 2018.
28. N. Hamada és Y. Fujimichi, „Classification of radiation effects for dose limitation purposes: history, current situation and future prospects” *Journal of Radiation Research*, 55. kötet, 4. szám, 2014.
29. International Commission on Radiological Protection, The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103, 37 (2-4) szerk., Elsevier, 2007.

30. European Commission, Directorate-General for Energy, E. Meijne, Q. Chen, A. Weers, J.-P. Degrange, Z. K. Hillis, K. Smith és s. Lepicard, Effluent and dose control from European Union NORM industries : assessment of current situation and proposal for a harmonised Community approach: volume 1, main report, Publications Office, 2016.
31. J. Lee, Y.-J. Kim, J.-S. Chae, S. J. Oh, E. Kwon, J.-M. Lim, H. Lee, H. J. Han, K. M. Pham, S. Nour, J. La Rosa, P. Gaca és D. Benoit, „Preparation and evaluation of new reference materials for naturally occurring radioactive materials (NORM): Zirconium silicate, bauxite, and phosphogypsum” *Applied Radiation and Isotopes*, 168. kötet, pp. 109525, 2021.
32. R. Kardos, Z. Sas, A. Shahrokhi, J. Somlai és T. Kovács, „Radionuclide content of NORM by-products originating from the coal-fired power plant in Oroszlány (Hungary),” *Radiation Protection Dosimetry*, 167. kötet, 1-3. szám, pp. 266-269, 2015.
33. A. Shahrokhi, M. Adelikhah, T. Kovács, E. Tóth-Bodrogi és S. Chalunok, „Radioactivity of building materials in Mahallat, Iran -an area exposed to a high level of natural background radiation -attenuation of external radiation doses,” *Materiales de Construcción*, 70. kötet, 340. szám, pp. e233, 2020.
34. International Atomic Energy Agency, Management of NORM residues, Bécs: IAEA, pp. 17, 2013.
35. V.-H. Doung, D.-T. Nguyen, A. Peka, E. Tóth-Bodrogi, M. Hegedűs és T. Kovács, „Transfer and bioaccumulation of ^{210}Po from soil to water spinach (*Ipomoea aquatica* Forrsk.) in Vietnam” *Journal of Environmental Radioactivity*, 231. kötet, pp. 106554, 2021.
36. T. Kovács, M. Horváth, A. Csordás, G. Bátor és E. Tóth-Bodrogi, „Tobacco plant as possible biomonitoring tool of red mud dust fallout and increased natural radioactivity” *Heliyon*, 6. kötet, 3. szám, pp. e03455, 2020.
37. M. Horváth, C. Ipbüker, M. Hegedűs, T. Kovács és A. H. Tkaczyk, „Development of measurement system for adsorption of long-lived radon decay products on the

- leaf surface of tobacco plants” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 313. kötet, pp. 391-400, 2017.
38. A. Shahrokhi, M. Adeli, S. Chalupnik, E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi és T. Kovács, „Radioactivity of building materials in Mahallat, Iran – an area exposed to a high level of natural background radiation – attenuation of external radiation doses” *Materiales de Construcción*, 70. kötet, 340. szám, pp. e233, 2020.
39. M. Hegedűs, Z. Sas, E. Tóth-Bodrogi, T. Szántó, J. Somlai és T. Kovács, „Radiological characterization of clay mixed red mud in particular as regards its leaching features” *Journal of Environmental Radioactivity*, , pp. 1-7, 2016.
40. K. Kovler, A. Perevalov, V. Steiner és L. Metzger, „Radon exhalation of cementitious materials made with coal fly ash: Part 1 – scientific background and testing of the cement and fly ash emanation” *Journal of Environmental Radioactivity*, 82. kötet, 3. szám, pp. 321-334, 2005.
41. J. Somlai, V. Jobbágy, J. Kovács, S. Tarján és T. Kovács, „Radiological aspects of the usability of red mud as building material additive” *Journal of Hazardous Materials*, 150. kötet, 3. szám, pp. 541-545, 2008.
42. Z. Szabó, P. Völgyesi, C. Szabó, Z. Kis, O. Csorba és É. H. Nagy, „Radioactivity of natural and artificial building materials – a comparative study” *Journal of Environmental Radioactivity*, 118. kötet, pp. 64-74, 2013.
43. Z. Sas, J. Somlai, G. Szeiler és T. Kovács, „Usability of clay mixed red mud in Hungarian building material production industry” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 306 kötet, pp. 271-275, 2015.
44. Á. M. Sanjuán, B. Quintana és C. Agriz, „Coal bottom ash natural radioactivity in building materials” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 319. kötet, pp. 91-99, 2019.
45. M. Sanjuán, A. J. Suarez-Navarro, C. Agriz és E. Estévez, „Radiation dose calculation of fine and coarse coal fly ash used for building purposes” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 327. kötet, 2. szám, pp. 1045-1054, 2021.

46. International Atomic Energy Agency, IAEA Safety Standards for protecting people and the environment - Management of Residues Containing Naturally Occurring Radioactive Material from Uranium Production and Other Activities. Specific Safety Guide No. SSG-60, Bécs: IAEA, 2021.
47. J. Jónás, J. Somlai, E. Tóth-Bodrogi, M. Hegedűs és T. Kovács, „Study of a remediated coal ash depository from a radiological perspective” *Journal of Environmental Radioactivity*, 173. kötet, pp. 75-84, 2017.
48. L. Juhász, P. Szerbin, Z. Lendvai, M. Csóvári, I. Benkovics, A. Várhegyi, B. Kanyár és Z. Várkonyi, „Results of pilot studies of environmental restoration of uranium mining tailings ponds in Hungary” *Science of The Total Environment*, 272. kötet, 1. szám, pp. 251-252, 2021.
49. J. A. Labrincha, F. Puertas, W. Schroeyers, K. Kovler, Y. Pontikes, C. Nuccetelli, K. Pavel, . Y. O. Kovalchuk, O. Petropavlovsky, M. Komljenovic, E. Fidanchevski, R. Wieggers, E. Volceanov, E. Gunay, Á. M. Sanjuán, V. Ducman, B. Angjusheva, D. Bajare, T. Kovács, G. Bátor, S. Schreur, L. J. Barroso de Aguiar és L. J. Porvis, „From NORM by-products to building materials” in *Naturally Occurring Radioactive Materials in Construction, Integrating Radiation Protection in Reuse (COST Action Tu1301 NORM4BUILDING*, pp. 183-252, 2017
50. World Health Organization, WHO handbook on indoor radon: a public health perspective, WHO, 2009.
51. International Atomic Energy Agency, Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards - No. GSR Part 3, Bécs: IAEA, 2014.
52. European Commission, Radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials - Radiation Protection 112, 2000.
53. C. D. 2013/59/EURATOM, *Directives*, Official Journal of the European Union, 2013.

54. N. Ariffin, M. M. Al Bakri Abdullah, R. M. Rozainy és M. F. Murshed, „Geopolymer as an adsorbent of heavy metal: A review,” in *AIP Conference Proceedings*, 2017.
55. I. Zákányi és T. Korim, „Alkáli aktivált szervesetlen polimerek, mint a kötőanyagok újabb generációja” *Építőanyag*, 63. kötet, 3-4. szám, pp. 74-77, 2011.
56. J. Davidovits, *Geopolymer Chemistry and Applications*, 4th Edition, pp. 115-124, 2015
57. J. Davidovits, „Geopolymer Chemistry and Properties,” Compiègne, 1988.
58. *1996. évi CXVI. törvény az atomenergiáról*, 1996.
59. International Atomic Energy Agency, IAEA Safety Standards for protecting people and the environment Classification of Radioactive Waste - General Safety Guide No. GSG-1, Bécs: IAEA, 2009.
60. M. Kaszáné Dr. Kiss, *Hulladékgazdálkodás*, Debrecen: Debreceni Egyetem, 2013.
61. L. De Filippis, K. Rehman, H. Muhammad, S. Münir, Ö. Ahmet és R. Mermut, „Chapter 8 - Role of Phytoremediation in Radioactive Waste Treatment” in *Soil Remediation and Plants*, Academic Press, pp. 207-254, 2015.
62. I. Szűcs és E. Domokos, *A nukleáris ipar hulladékkezelési kihívásai*, Veszprém: Pannon Egyetem Környezetmérnöki Intézet, 2013.
63. G. Földiák, „Az izotópok ipari alkalmazása”, Műszaki Kiadó, Budapest, 1972.
64. L. G. Nagy és L. K. Nagyné, *Radiokémia és izotóptechnika*, Budapest: Műegyetemi kiadó, 1997.
65. R. Ravichandran, J. P. Binukumar, Rajan Sreeram, L. S. Arunkumar, „An overview of radioactive waste disposal procedures of a nuclear medicine department”, *Jurnal of Medical Physics*, 36. kötet, 2. kiadás, pp. 95-99, 2011.
66. K. Baranyi, L. Daróczi, G. Fink, I. Frey, J. Göttli, F. Kovács, G. Kováta, L. Manga, Z. Nagy, Z. Pécsi, Z. Pónya, O. Sallai és G. Végh, „Környezetvédelmi jelentés” MVM Paksi Atomerőmű Zrt. , 2016.

67. F. Feil, E. Elter, J. Otterbein és Á. Nényei, „Folyékony radioaktív hulladékok térfogatcsökkentése az MVM Paksi Atomerőműben” *Nukleon*, 167. kötet, pp. 1-3, 2014.
68. MVM Paks II. Zrt., „Új atomerőművi blokkok létesítése a paksi telephelyen - Környezeti hatástanulmány,” MVM Paks II. Zrt., 2019.
69. P. Zagyvai, Z. Kókai, Z. Hózer, D. Breitner, M. Fábrián, S. Török és E. Börösök, A nukleáris üzemanyagciklus radioaktív hulladékai, Budapest: MTA Energiatudományi Kutatóközpont, 2013.
70. A. Baksay, P. Buday, G. Németh és A. Fritz, „Az NRHT hulladékátvételi követelményeinek felülvizsgálata” RHK Kft., 2014.
71. G. Pátzay, Atomenergetika és nukleáris technológia, Budapest: BME, 2011.
72. MVM Paks II. Zrt. , „Új atomerőművi blokkok létesítése a paksi telephelyen - Radioaktív hulladékok és kiégett kazetták kezelése és elhelyezése (Környezeti hatástanulmány),” MVM Paks II. Zrt. , Paks, 2013.
73. M. Okumara, S. Kerisit, I. C. Bourg, L. N. Lammers, T. Ikeda, M. Sassi, K. M. Rosso és M. Machida, „Radiocesium interaction with clay minerals: Theory and simulation” *Journal of Environmental Radioactivity*, 189. kötet, pp. 135-145, 2018.
74. J. Chorover, S. Choi, K. M. Amistadi, G. Crosson és T. K. Mueller, „Linking cesium and strontium uptake to kaolinite weathering in simulated tank waste leachate” *Environmental Science & Technology*, 37. kötet, 10. szám, pp. 2200-8, 2013.
75. N. H. Erten, S. Aksoyoglu, S. Hatipoglu és H. Göktürk, „Sorption of Cesium and Strontium on Montmorillonite and Kaolinite” *Radiochimica Acta*, pp. 147-152, Május 1988.
76. John C. Mauro, „Chapter 3 - Fick's Laws of Diffusion” *Materials Kinetics*, Elsevier, pp.39-58, 2021

77. P. Hypes, W. Geist és P. A. Santi, „Analytical Techniques in Nuclear Safeguards” in *Handbook of Radioactivity Analysis*, pp. 1243-1281, 2012
78. V. Valkovic, „CHAPTER 5 - Measurements of Radioactivity” in *Radioactivity in the Environment*, Elsevier, pp. 117-258, 2020.
79. D. Bódizs, *Atommagsugárzások mérés technikái*, Budapest: Typotex, 2009.
80. P. J. Wallbrink, D. E. Walling és Q. He, „Radionuclide Measurement Using HPGe Gamma Spectrometry” in *Handbook for the Assessment of Soil Erosion and Sedimentation Using Environmental Radionuclides*, F. Zapata, Szerk., Dordrecht, Springer, pp. 67-96, 2007
81. G. R. Gilmore, „Chapter 3 - Semiconductor Detectors for Gamma-Ray Spectrometry”, pp. 39-60, 2008.
82. I. Gutiérrez-Álvarez, J. E. Martín, J. A. Adame, C. Grossi, A. Vargas és P. J. Bolívar, „Applicability of the closed-circuit accumulation chamber technique to measure radon surface exhalation rate under laboratory conditions” *Radiation Measurements*, 133. kötet, pp. 106284, 2020.
83. B. Kanyár, J. Somlai, L. D. Szabó „Környezeti sugárzások, radioökológia”, pp. 54-59, 1996.
84. C. Doering, R. Akber, A. Bollhöfer és P. Lu, „Radon-222 diffusion length and exhalation characteristics of uraniumiferous waste rock and application to mine site remediation in the Australian wet-dry tropics,” *Journal of Environmental Radioactivity*, 216. kötet, pp. 108186, 2020.
85. N. Nassiri-Mofakham, M. Kakaei és M. Alavi, „A study on radon diffusion and exhalation of soils under transient conditions: Theoretical and experimental approach” *Applied Radiation and Isotopes*, 192. kötet, pp. 110616, 2023.
86. R. A. Wedad, A. G. E. Abbadly, „Measurement of radon concentrations in soil and the extent of their impact on the environment from Al-Qassim, Saudi Arabia” *Natural Science*, 5. kötet, 1. szám. pp. 93-98, 2013.

87. J.L. Mas, L.M. Velazquez, S.J. Hurtado-Bermúdez, „Optimization of AlphaGUARD AquaKIT set-up for analysis of radon in water using stainless-steel bottles and its validation through IAEA standard samples”, *Radiation Measurements*, 142. kötet, pp. 106545, 2021.
88. C. Yu, D. J. LePoire, J. Cheng, E. Gnanapragasam, S. Kamboj, J. Arnish, B. Biwer, A. J. Zielen, A. W. Williams, A. Wallo III és H. T. Peterson Jr., „User’s Manual for RESRAD-BUILD Version 3” Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, 2003.
89. Nagy, Noémi, „Ioncsere-folyamatok az agyagásványok „nanolaboratóriumában”” *Magyar Kémiai Folyóirat*, 123. kötet, 1. szám, pp. 25-32, 2017.
90. R. L. Baker, M. P. White és M. G. Pierzynski, „Changes in microbial properties after manure, lime, and bentonite application to a heavy metal-contaminated mine waste,” *Applied Soil Ecology*, 48. kötet, 1. szám, pp. 1-10, 2011.
91. A. Havassy, „A bentonit keletkezése, összetétele, minősége, mennyisége és felhasználása,” in *Komlóska bányászatának története és földtani*, pp. 3, 1998.
92. E. Mátyás, Természetes zeolitok talajjavítási, növénytermesztési alkalmazásra, Mád, pp. 48-68; 52-91, 2003.
93. N. Sobus, I. Czekaj, V. Diichuk és I. M. Kabosa, „Characteristics of the structure of natural zeolites and their potential application in catalysis and adsorption processes” *Technical transaction*, pp. e2020043, 2020.
94. L. Bognár, Ásványhatározó, Budapest: Gondolat Könyvkiadó, 1987.
95. H. Cheng, Y. Zhou és Q. Liu, „Kaolinite nanomaterials: preparation, properties and functional application” *Clay Minerals*, pp. 285-334, 2019.
96. R. A. Hind, K. S. Bhargava és C. S. Grocott, „The surface chemistry of Bayer process solids: a review” *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 146. kötet, 1-3. szám, pp. 359-374, 1999.
97. A. Buruzs, B. Csöke, I. Czupy, E. Domokos, B. Fazekas, L. Horváth, Á. Kárpáti, B. Kovács, R. Kurdi, G. Nagy, V. Pítás, I. Szűcs, I. Szabó, P. Thury, A. Torma, L.

- Vagdalt, A. Vágvölgyi és A. Várhegyi, 19. kötet - Hulladékgazdálkodás II., Veszprém: Pannon Egyetem – Környezetmérnöki Intézet, pp. 415-430, 2012.
98. S. Wang, M. H. Ang és O. M. Tadé, „Novel applications of red mud as coagulant, adsorbent and catalyst for environmentally benign processes” *Chemosphere*, 72. kötet, pp. 1621-1635, 2008.
99. T. Bálint, „Nem konvencionális beágyazó anyagok kis- és közepes aktivitású fémhulladékok tárolására” Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék, Szakdolgozat, 2021.
100. S. Deme, Félvezető detektorok magsugárzás mérésére, Budapest: Műszaki Könyvkiadó, 1968.
101. O. R. Abdel Rahman, A. A. Zaki és M. A. El-Kamash, „Modeling the long-term leaching behavior of ^{137}Cs , ^{60}Co , and $^{152,154}\text{Eu}$ radionuclides from cement–clay matrices” *Journal of Hazardous Materials*, 145. kötet, 3. szám, pp. 372-380, 2007.
102. S. K. Seipel, L. D. Sheumaker és B. L. Kirk, „Kinetic Tests of Non-Amended and Cemented Paste Tailings Geochemistry in Subaqueous and Subaerial Settings” Lappeenranta, Finland, 2017.
103. ASTM, C1308-08 Standard Test Method for Diffusive Releases from solidified Waste and a Computer Program to Model Diffusive, Fractional Leaching from Cylindrical Waste Forms, West Conshohocken, PA.: ASTM International, 2008.
104. E. Kocsis, M. Fehérvári, M. Novák, E. Tóth-Bodrogi és T. Kovács, „Preliminary Study of Cesium Immobilization in a Geopolymer Matrix” *Hungarian Journal of Industry and Chemistry*, 51. kötet. 1. szám, pp. 9–13, 2023
105. J. Jónás, Z. Sas, J. Vaupotic, E. Kocsis, J. Somlai és T. Kovács, „Thoron emanation and exhalation of Slovenian soils determined by a PIC detector-equipped radon monitor,” *Nukleonika*, 61. kötet, 3. szám, pp. 379-384, 2016.
106. M. M. Orsonum, B. T. Ajibola, A. Fc, O. Osanyinlusi, O. D. Afolayan és O. M. Mukhtar, „Assessment of ambient gamma radiation dose and annual effective dose associated with radon in drinking water from gold and lead mining area of

- Moro, North-Central Nigeria” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 3281. kötet, pp. 129-136, 2011.
107. R. Trevesi, F. Leonardi, S. Risica és C. Nuccetelli, „Updated database on natural radioactivity in building materials in Europe” *Journal of Environmental Radioactivity*, 187. kötet, pp. 90-105, 2018.
 108. C. Kamunda, M. Muthuthu és M. Madhuku, „An Assessment of Radiological Hazards from Gold Mine Tailings in the Province of Gauteng in South Africa” *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 13. kötet, 1. szám, p. 138, 2016.
 109. R. Trevisi, S. Risica, M. D'Alessandro, D. Paradiso és C. Nuccetelli, „Natural radioactivity in building materials in the European Union: a database and an estimate of radiological significance” *Journal of Environmental Radioactivity*, 105. kötet, pp. 11-20, 2012.
 110. K. C. Man és S. H. Yeung, „Modeling and measuring the indoor radon concentrations in high-rise buildings in Hong Kong,” *Applied Radiation and Isotopes*, 50. kötet, 6. szám, pp. 1131-1135, 1999.
 111. A. N. Shaikh, V. T. Ramachandran és V. A. Kumar, „Monitoring and modelling of indoor radon concentrations in a multi-storey building at Mumbai, India” *Journal of Environmental Radioactivity*, 67. kötet, 1. szám, pp. 15-26, 2003.
 112. P. Colombo, R. Doty, D. Dougherty, M. Fuhrmann és J. Haiser, „ Accelerated leach test(s) program annual report” Nuclear waste research group, Department of Nuclear Energy, Brookhaven National Laboratory, Associated Universities, INC., Upton, Long Island, New York, 1985.
 113. Q. Tian, S. Nakama és K. Sasaki, „Immobilization of cesium in fly ash-silica fume based geopolymers with different Si/Al molar ratios” *Science of The Total Environment*, 867. kötet, pp. 1127-1137, 2019.

Publikációs tevékenység

Az értekezés témájával kapcsolatos publikációk

Cikkek (5)

1. E. Kocsis, M. Fehérvári, M. Novák, E. Tóth-Bodrogi, T. Kovács: Preliminary Study of Cesium Immobilization in a Geopolymer Matrix, Hungarian Journal of Industry and Chemistry, Vol. 51 No. 1 (2023)
2. E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, A. Peka, M. Adelikhah, T. Kovács: Radiological impact assessment of different building material additives, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 330, 1517–1526 (2021).
3. E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, A. Peka, M. Adelikhah, T. Kovács: NORM anyagokat tartalmazó építőanyagok radiológiai vizsgálata, Sugárvédelem, XIV: 2. 16-36., (2021)
4. M. Imani, M. Adelikhah, A. Shahrokhi, G. Azimpour, A. Yadollahi, E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, T. Kovács: Natural radioactivity and radiological risks of common building materials used in Semnan Province dwellings, Iran, Environmental Science and Pollution Research, 28, 41492–41503 (2021)
5. A. Shahrokhi, M. Adelikhah, S. Chalupnik, E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, T. Kovács: Radioactivity of building materials in Mahallat, Iran – an area exposed to a high level of natural background radiation – attenuation of external radiation doses, Materiales de Construcción, 70: 340, 233 (2020)

Konferencia kiadványok (8)

1. E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, A. Peka, M. Adelikhah, T. Kovács: Radiological Impact Assessment of Different Building Material Additives, Third National Conference On Radiation Awareness and Detection in Natural Environment (RADNET-III) Tehri Garhwal, India: Department of Physics, Govt. P.G. College New Tehri, Department of Physics, H.N.B. Garhwal University Badshahi Thaul Campus (2021)
2. E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, A. Peka, M. Adelikhah, T. Kovács: Radiological impact assessment of industrial by-products, VII. Terrestrial Radioisotopes in

- Environment: International Conference on Environmental Protection, Veszprém, Magyarország: Social Organization for Radioecological Cleanliness (2020)
3. A. Shahrokhi, M. Adelikhah, E. Kocsis, A. Peka, T. Kovács: Radiological risk assessment of indoor radon concentration in a high natural background radiation area: a case study of Mahallat, VII. Terrestrial Radioisotopes in Environment: International Conference on Environmental Protection. Veszprém, Magyarország: Social Organization for Radioecological Cleanliness, (2020)
 4. M. Adelikhah, A. Shahrokhi, M. Imani, A. Peka, E. Kocsis, T. Kovács: Seasonal indoor ^{222}Rn and ^{220}Rn measurements and inhalation dose assessment for inhabitants in Mashhad, Iran, VII. Terrestrial Radioisotopes in Environment: International Conference on Environmental Protection, Veszprém, Magyarország: Social Organization for Radioecological Cleanliness (2020)
 5. A. Peka, E. Tóth-Bodrogi, E. Kocsis, T. Kovács: Cesium immobilization studies in different kind of geopolymer matrixes, 6th Educational Symposium on Radiation And Health by Young Scientists (ESRAH2019), Aomori, Japán, (2019)
 6. E. Kocsis, A. Peka, T. Kovács, E. Tóth-Bodrogi: Radiological monitoring of NORM deposits, VIII. Interdiszciplináris Doktorandusz Konferencia, Magyarország: Pécsi Tudományegyetem Doktorandusz Önkormányzat (2019)
 7. E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, T. Kovács: Preliminary study of Cs-137 immobilization in geopolymer matrix, 2ND Sarcos Training School “Advanced materials and technologies based on inorganic binders” Skopje - Ohrid (FYR of Macedonia) (2018)
 8. E. Kocsis, A. Peka, E. Tóth-Bodrogi, E. Fidanchevski, T. Kovács: Environmental radiation background mitigation by application of geopolymer matrices, 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA 2018): For Understanding Chronic Low-Dose-Rate Radiation Exposure Health Effects and Social Impacts (2018)

Egyéb publikációk

Cikkek (3)

1. A. Csordás, K. Zs. Szabó, Z. Sas, E. Kocsis, T. Kovács: Indoor radon levels in Hungarian kindergartens, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 328, 1375–1382 (2021)
2. V. H. Duong, T. D. Nguyen, E. Kocsis, A. Csordás, M. Hegedűs, T. Kovács: Transfer of radionuclides from soil to *Acacia auriculiformis* trees in high radioactive background areas in North Vietnam, *Journal of Environmental Radioactivity*, 229–230, 106530 (2021)
3. V. H. Duong, T. D. Nguyen, M. Hegedűs, E. Kocsis, T. Kovács: Study of Well Waters from High-Level Natural Radiation Areas in Northern Vietnam, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 18: 2, 469 (2021)

Konferencia kiadványok (10)

4. E. Kocsis, H. Duong Van, D. Nguyen Thanh, A. Peka, M. Hegedűs, A. Csordás, T. Kovács: Investigation of soil to plant transfer factors of ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs in Vietnamese crops, VII. Terrestrial Radioisotopes in Environment: International Conference on Environmental Protection, Veszprém, Magyarország: Social Organization for Radioecological Cleanliness (2020)
5. E. Kocsis, H. Doung Van, T. Doung Nguyen, M. Hegedűs, E. Tóth-Bodrogi, T. Kovács: Measurements of soil to plant transfer factors of radionuclides in Vietnamese crops, Pannon Egyetem, Mérnöki Kari Tudományos Konferencia (2020)
6. K. Zs. Szabó, A. Csordás, E. Kocsis, T. Kovács, Z. Sas: Indoor radon concentration in 88 Hungarian kindergartens, VII. Terrestrial Radioisotopes in Environment: International Conference on Environmental Protection Veszprém, Magyarország: Social Organization for Radioecological Cleanliness (2020)
7. V. H. Duong, E. Kocsis, A. Csordás, M. Hegedűs, Tibor Kovács, C. T. Tien: ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{238}U in well waters from high-level natural radiation areas in northern Vietnam, The 3rd Workshop on Radiation Research and Its Related Issue 2020 & 7th Educational Symposium on Radiation and Health by young scientists (ESRAH2020) Joint Symposium (2020)

8. A. Csordás, K. Zs. Szabó, Z. Sas, E. Kocsis, T. Kovács: Indoor radon survey in Hungarian kindergartens, Seventh International Conference on Radiation in Various Fields of Research (RAD 2019), Nis, Szerbia: RAD Centre (2019)
9. A. Shahrokhi, M. AdeliKhah, E. Kocsis, T. Kovács: Radiological risk assessment of stone quarry as a high radon level site (Case Study: Open-pit slate stone mine), 5th International Conference on Environmental Radioactivity (ENVIRA2019): Variations of Environmental Radionuclides, (2019)
10. E. Tóth-Bodrogi, E. Kocsis, A. Peka, A. Csordás, T. Kovács: Radiological survey the surrounding of a closed ore mine in Hungary, 8th International Symposium on IN SITU NUClear METrology as a tool for radioecology (INSINUME 2019), Kusadasi, Törökország (2019)
11. T. Kovács, E. Kocsis, A. Csordás, K. Zs. Szabó, Zs. Homoki: Current state of the Hungarian indoor radon map, 8th International Symposium on IN SITU NUClear METrology as a tool for radioecology (INSINUME 2019), Kusadasi, Törökország (2019)
12. E. Fidanchevski, A. Csordás, E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, B. Angjusheva, V. Jovanov, S. Kramar, V. Ducman, T. Kovács: Mechanical and radiological study of fly ash embedded in the clay matrix, NORM IX – The 9th International Symposium on NORM, Denver, Colorado (2019)
13. O. L. Várady-Botyánszky, E. Kocsis, E. Tóth-Bodrogi, T. Kovács: Investigation of Po-210 content in phosphorous fertilizers, estimation of radiation exposure from their application, VI. Terrestrial Radioisotopes in Environment: International Conference on Environmental Protection, Veszprém, Magyarország: Social Organization for Radioecological Cleanliness (2018)

Köszönetnyilvánítás

Ezúton szeretném megköszönni a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék valamennyi munkatársának, akik az évek alatt segítséget nyújtottak, tartották bennem a lelket, gondoskodtak a remek hangulatról, ezáltal is felejthetetlen élményeket okozva. Köszönöm Kovács Tibornak a kutatásaim során nyújtott támogatást. Végül, de természetesen nem utolsó sorban, örök hálával és külön köszönettel tartozom témavezetőmnek, Tóth-Bodrogi Editnek, aki nélkül ez a dolgozat létre sem jöhetett volna. Köszönöm a rengeteg segítséget, támaszt és a néha szükséges dorgálást.

Mindemellett természetesen különös köszönet illeti a szüleimet, akik hősiiesen helyt álltak, a legnehezebb pillanatokban és mindvégig mellettem álltak.

Természetesen a szakmai, illetve a családi támogatás mellett, köszönettel tartozom barátaimnak, akik mindvégig támogattak és biztosították a fergeteges hangulatot.

Köszönöm! ☺