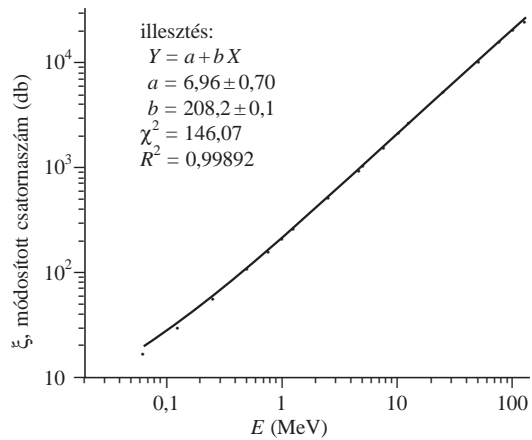


3. ábra. Az RFT-MKD TYP70336 2018 Si-detektor feszültség-visszaram karakterisztikája

bontóképesség-változás nyomon követése pedig a detektor feszültség-visszaram karakterisztikáját kiegészítve segíti az optimális munkapont pontos kijelölését [2]. A 3. ábrán egy RFT-MKD szilícium félvezető detektor karakterisztikáját vettük fel. Jól látható, hogy a visszaram nagysága a működési tartományban alacsony és közel állandó (0,5–0,6 mA). A letérési feszültséget 170 V-ig nem értük el.

Mivel a detektorokban leadott energia három nagyságrenden belül változhat, így az egyes elektronikus eszközöknek (pl. előerősítő, analizátor) 1:1000-es dinamikatartománnyal kell rendelkezniük. Ennek ellenőrzésére impulzusgenerátoros beméréseket végzünk.

A Canberra 2003BT előerősítő és az InSpector analizátor bemérése folyamán többször is meg kellett változtatni az erősítést, így a leolvasott csatornaszámokat is módosítani kellett az erősítések arányában (pl. fele akkora erősítés esetén kétszer akkora csatornaszám-értéket kell vennünk). Az 4. ábrán ez a „módosított csatornaszám” (ξ) szerepel a bejövő energia függvényében (log-log). A mérés azt mutatta, hogy a kívánt jelegyenérték-tartományban (100 keV – 100 MeV) a zajszint felett a rendszer linearitása a mérés hibahatárán belül biztosítható. A cél az, hogy a TRITEL-be kerülő, fejlesztés alatt álló elektronikus egységek részére referencia álljon rendelkezésre.



4. ábra. A Canberra 2003BT előerősítő + InSpector amplitúdóanalizátor linearitásának vizsgálata

A koincidenciakör tesztelése úgyszintén impulzusgenerátorral történik. Ennek a vizsgálatára irányuló mérések még hátravannak.

Összefoglalás

Az űrhajósokat érő sugárhatás (egyenérték dózis) közvetlen mérésére szolgáló LET-spektrométer kifejlesztése mind az AEKI, mind a magyar űrkutatás egésze szempontjából minőségileg új lehetőséget jelent. Két-három éven belül az orosz űrkutatók (az Orvosbiológiai Problémák Intézete, az Orosz Űrkutatói Iroda, ill. az Enyergija cég) [1] repülési lehetőséget biztosítanak a TRITEL számára a Nemzetközi Űrállomás külső platformján, valamint a későbbiekben egy Mars-szonda fedélzetén is.

Irodalom

- PÁZMÁNDI T.: *Űrdozimetria báromtengelyű szilíciumdetektoros teleszkóp és a Pille bordonozható TLD rendszer alkalmazásával* – PhD értekezés, BME NTI, 2003.
- SÁGI L., DEME S.: *A teljesen kiűrtített rétegű szilíciumdetektor vizsgálata* – *Izotóptechnika* 28/1 (1985) 21–27

RÖNTGENSPEKTROSKÓPIAI MÓDSZEREK AZ AKTINIDÁK KÖRNYEZETI HATÁSÁNAK VIZSGÁLATÁBAN

Alsecz Anita, Osán János, Török Szabina

KFKI Atomenergia Kutatóintézet, Sugárvédelmi és Környezetfizikai Laboratórium

Atomfegyver-kísérletekből, a nukleáris üzemanyagciklus baleseteiből, illetve tűzzel és robbanással járó balesetektől nagy aktivitáskoncentrációjú – úgynevezett „forró” – részecskék kerülhetnek ki a környezetbe. A kikerült forró részecskék radiotoxicitásának felméréséhez nemcsak radioaktivitásuk, hanem fizikai és kémiai jellemzésük is nagyon fontos. Környezeti eredetű és

reaktorvízből szűrt forró részecskéket vizsgáltunk szilárd fázisú urán és plutónium oxidációs állapotának meghatározása céljából.

A forró részecskék detektálása autoradiográfiával és pásztázó elektronmikroszkóppal történt. Az aktinidák kémiai állapotának meghatározásához kutatócsoportunk roncsolásmentes módszert alkalmazott, a röntgenabszorpciós spektrum élközeli finomszerkezetén alapuló (XANES) spektrometriát, amely a vizsgált elem oxidációs állapotán kívül a lokális környezetről is információt nyújt.

A III. Nukleáris Technikai Szimpóziumon (Budapest, 2004. december 2–3.) elhangzott előadás alapján

Forró részecskék U-L₃ μ-XANES spektrumainak illesztési eredményei

Minták és standardok	U(IV) %	U(VI) %	$I_{w(IV)}$	$I_{w(VI)}$	σ_w	$I_{s(IV)}$	$I_{s(VI)}$	σ_s	RMS
UO ₂ (standard)	98	2	0,809	0,014	6,704	0,106	0,009	6,338	0,00015
U ₃ O ₈ (standard)	29	71	0,348	0,857	7,351	0,006	0,071	5,844	0,00026
P1 (atomerőművi dörzsminta)	71	29	0,844	0,341	5,350	0,104	0,029	4,642	0,00120
P2 (atomerőművi dörzsminta)	60	40	0,725	0,483	6,837	0,001	0,002	8,744	0,00072
M1 (atomerőművi korróziós szemcse)	36	64	0,459	0,815	5,662	0,152	0,243	6,056	0,00196
K1 (környezeti részecske)	91	9	0,73	0,07	6,97	0,09	0,05	6,36	0,00011
K2 (környezeti részecske)	91	9	0,78	0,08	7,12	0,09	0,05	6,34	0,00011
K3 (környezeti részecske)	100	0	0,91	0,00	6,28	0,10	0,00	5,71	0,00019
K4 (környezeti részecske)	75	25	0,75	0,25	7,10	0,07	0,02	5,62	0,00014

A röntgenabszorpciós módszer akkor is alkalmazható, amikor az aktinidák mikroszkopikus mintatérfogatban koncentráltan vannak jelen. A XANES-mérések során az urán és a plutónium +4 és +6 oxidációs állapotú formáinak arányát határoztuk meg. Méréseink megmutatták, hogy ezek az arányok a részecskék eredetétől függően erősen különböznek lehetnek.

Környezeti mintáink atombombát szállító repülőgép tűzzel járó balesetének helyszínéről származnak, ahol az üledékben az aktivitáskoncentráció heterogén, és ez forró részecskék jelenlétére utal. A becsapódási ponton a plutóniummal erősen szennyezett üledék ^{239,240}Pu aktivitáskoncentrációja 60 kBq/m² volt.

Anyag és módszer

Minták

Az atomerőműből származó minták, melyeket a mikronyalábos röntgenabszorpciós méréseknél használtunk, nyomottvízes atomerőmű pihentető medencéjéből származnak. A mintában lévő radioaktív részecskéket a BME munkatársai autoradiográfiával azonosították, továbbiakban csak ezeken a részecskéken végeztünk méréseket. Az autoradiogramon sötét foltokként megjelenő nagy aktivitású helyek azonosítása után a Nuclepore-szűrőből kivágtuk a részecskéket tartalmazó kisebb darabokat, így a röntgenspektroszkópiai méréseknél a forró részecskék keresése 1 mm sugarú környezetre korlátozódott. A kiválasztott területeken a jelentősebb röntgenintenzitást kibocsátó részecskéről vettünk fel fluoreszcens és abszorpciós spektrumot.

A plutónium környezeti viselkedését nem nukleáris balesetben kijutott nukleáris töltet mikroszkopikus részecskéin vizsgáltuk, a töltetet szállító repülőgép balesetének helyszínén vett üledékmintákból. A környezeti forró részecskéket γ-spektroszkópiával és morfológiai vizsgálatokkal lokalizálták.

Alkalmazott mérési módszer

Az abszorpciós méréseket szinkrotronforrásnál, a HASYLAB L nyalábcsatornáján végeztük [1].

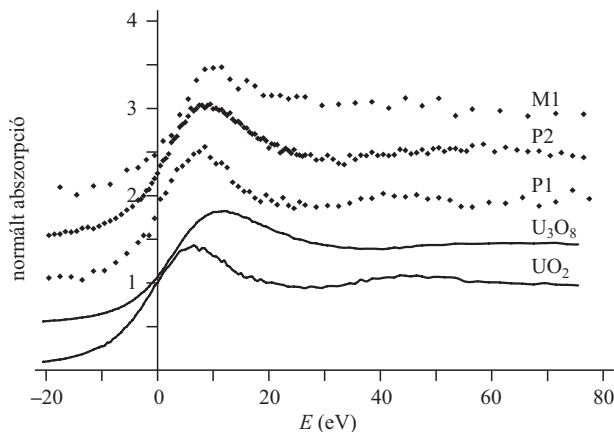
10⁻⁴ energiafelbontású Si(111) kettős monokromátor állított elő hangolható monokromatikus nyalábot az eltérítő mágnes fehér sugárzásából. Ennél a beállításnál az 1×1 mm²-es nyaláb fókuszálására polikapilláris féllencse (X-ray Optical Systems, USA) szolgált, amellyel 15 μm nyalábméret volt elérhető. Fluoreszcens módban történt az abszorpciós spektrumok felvétele, a Si(111) monokromátor léptetésével hangolva a gerjesztő energiát a plutónium L₃ abszorpciós éle (18060 eV), valamint az urán L₃ abszorpciós éle (17167 eV) környezetében. A fluoreszcens röntgenfotonok detektálása a bejövő nyalábhöz képest 90°-os szögben elhelyezett energiadiszerzív GRESHAM Si(Li)-detektorral történt. Uránstandardként U₃O₈ és UO₂ részecskéket, valamint vékony UF₄-fóliát (34 μg/cm², Micromatter) használtunk, plutónium-standardként Pu(III)-, Pu(IV)-, valamint Pu(VI)-kristályokat. A mérést 0,5–2 eV-os lépésközzel végeztük, a kisebb lépésközt az abszorpciós él közelében használtuk. A standard részecskék 5 és 20 μm átmérőjűek voltak. A mérési idő 5–20 s közt változott, a vizsgált elemek koncentrációjának függvényében.

Amikor környezeti (és más eredetű) mintákban a különböző elemek oxidációs állapotát vizsgáljuk, figyelembe kell vennünk, hogy a mintákban a vizsgált elem általában többféle módosulat keverékeként van jelen. A vizsgált minták XANES-elemzésének célja az adott elem kémiai környezetének meghatározása. Ez lehet az oxidációs állapot, illetve a lehetséges vegyület, amely az adott elemet tartalmazza. A második esetben arra az információra van szükségünk, hogy a vizsgált mintafajtában az adott elem milyen vegyületekben található meg. Ekkor mindegyik vegyületből standard mérésre van szükségünk, az ismeretlen minta spektrumát pedig a standard spektrumok lineáris kombinációjából állíthatjuk elő. Ehhez a módszerhez a spektrumokat elég kis lépésközzel kell felvenni, különösen az élközeli szerkezeteknél.

Eredmények

Az urán és a plutónium oxidációs állapotának vizsgálata forró részecskékben

A kiválasztott 5–70 μm átmérőjű forró részecskékben az urán és plutónium oxidációs állapotának meghatározásához μ-XANES spektrumokat vettünk fel az urán és plutónium L₃ élének környezetében. A spektrumok kiértékelését a legkisebb négyzetek módszerével végeztük, analitikus függvényekkel történő illesztést alkalmaztunk [2].



1. ábra. Atomerőművi egyedi részecskék U-L₃ μ-XANES spektruma

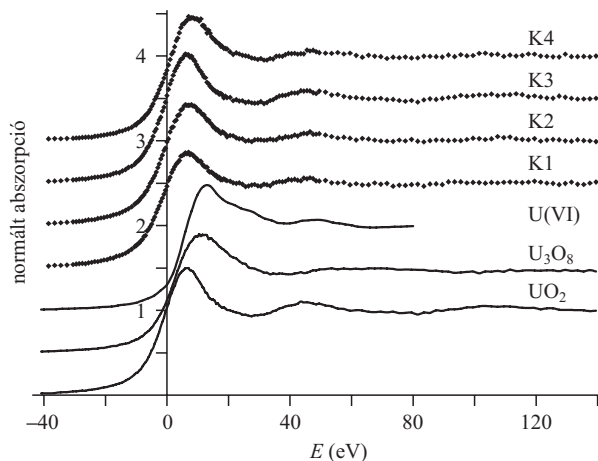
A standard részecskék és a vékony fóliák mért spektrumain kívül a Duff és munkatársai [3] által az NSLS szinkrotronforrásnál mért U(IV) és U(VI) standard spektrumokat is felhasználtuk a részecskékben található urán oxidációs állapotának meghatározásához. A plutónium oxidációs állapotának meghatározásához a *Christos Apostolidis* által készített plutóniumstandardokról μ-XANES spektrumokat vettünk fel. A fehér vonal és a többszörös szórás csúcs energia- és vonalszélesség-értékeit, valamint az arctg lépésfüggvény paramétereit a standard spektrumokból határoztuk meg, külön az U(IV) és U(VI), illetve Pu(IV) és Pu(VI) formára. A forró részecskékben a különböző oxidációs állapotú formák arányának megállapításához ezeket a paramétereket elemenként állandónak vettük az illesztési függvényben.

Az urán oxidációs állapotának vizsgálatára forró részecskékben

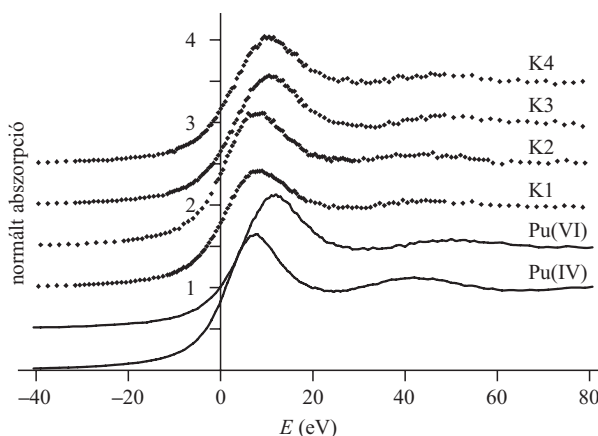
Az 1. táblázatban a kiválasztott atomerőművi és környezeti forró részecskékre vonatkozó illesztési eredményeket foglaltuk össze, ahol I_w és I_s a fehér vonal és a rezonanciaszórás csúcs intenzitása, σ_w és σ_s a hozzájuk tartozó szélességek. A (IV) és (VI) indexek az oxidációs állapotot jelentik. Az illesztés minőségét az eltérésnégyzetek átlagának négyzetgyökével (RMS, *root-mean-square*) jellemeztük. A kiválasztott atomerőművi részecskék U-L₃ μ-XANES spektrumait az 1. ábrán mutatjuk be.

A dörzsmintán található két, 5 μm körüli átmérőjű forró részecskében (P1, P2) az urán 30–40%-ban a mobilisabb U(VI), míg 60–70%-ban a kevésbé mobilis U(IV) formában volt jelen. Az M1 jelű, szintén ~5 μm átmérőjű korróziós szemcsében az urán 60–70%-ban a mobilisabb U(VI), vagyis legvalószínűbben U₃O₈ állapotban fordult elő.

Környezetbe kikerült forró részecskékben az uránt túlnyomórészt a kevésbé mobilis formában találtuk. Négy környezeti egyedi részecske, valamint uránstandardok μ-XANES spektruma látható a 2. ábrán.



2. ábra. Környezeti egyedi részecskék U-L₃ μ-XANES spektruma



3. ábra. Környezeti egyedi részecskék Pu-L₃ μ-XANES spektruma

Az atomerőművi egyedi részecskéket összehasonlítva a környezeti forró részecskékkel megállapítható, hogy az urán többnyire a kevésbé mobilis U(IV) formában volt jelen mind a környezeti, mind az atomerőművi forró részecskékben. Az U(IV) aránya a környezeti részecskékben nagyobb volt, mint a reaktor eredetű részecskékben. Az atomerőművi forró részecskékben 30–70%-ban mobilisabb U(VI)-ot is találtunk.

A plutónium oxidációs állapotának vizsgálatára forró részecskékben

A plutónium oxidációs állapotának vizsgálatára csak környezeti egyedi részecskékben volt lehetőségünk. Környezeti részecskékben két elkülönülő csoportot figyeltünk meg. Az egyik csoport a Pu(IV)-es, míg a másik csoport a Pu(VI)-os oxidációs formát tartalmazta. A 2. táblázatban a

Forró részecskék Pu-L₃ μ-XANES spektrumainak illesztési eredményei

minták	Pu(IV) %	Pu(VI) %	$I_{w(IV)}$	$I_{w(VI)}$	σ_w	$I_{s(IV)}$	$I_{s(VI)}$	σ_s	RMS
K1 (környezeti részecske)	92	8	0,61	0,05	7,13	0,06	0,03	7,47	0,00006
K2 (környezeti részecske)	97	3	0,79	0,03	7,11	0,10	0,00	11,40	0,00017
K3 (környezeti részecske)	25	75	0,23	0,69	6,99	0,01	0,10	7,20	0,00014
K4 (környezeti részecske)	33	67	0,29	0,57	7,15	0,05	0,05	9,11	0,00018

kiválasztott környezeti forró részecskékre vonatkozó illészési eredményeket foglaltuk össze. A 3. ábrán környezeti részecskék és Pu-standardok μ -XANES spektruma látható.

A különböző környezeti forró részecskék mérésének eredményeként a vizsgált részecskékben nem találtunk korrelációt az ugyanazon részecskékben jelen levő urán és plutónium oxidációs állapota között.

Összefoglalás

A röntgenabszorpciós spektrometria alkalmas aktinidák kémiai állapotának roncsolásmentes meghatározására folyadék- és szilárd mintákban. Különböző eredetű forró részecskéket összehasonlítva, a környezeti és atomerőművi forró részecskékben az urán nagyobb arányban a kevésbé mobilis U(IV) formában volt jelen, viszont az atomerőművi forró részecskékben a nagyobb arányban jelen levő U(IV) mellett a mobilisabb U(VI) is 30–70%-ban megjelent. Környezeti egyedi részecskékben a Pu(IV)

és Pu(VI) egyaránt előfordult, mint domináns forma, így a plutónium oxidációs állapotának meghatározása után a vizsgált részecskéket egyértelműen két különálló csoportra lehetett osztani: az egyik csoportra a Pu(IV), míg a másik csoportra a Pu(VI) forma volt jellemző. Ugyanazon vizsgált részecskékben a plutónium és az urán oxidációs állapota között nem találtunk korrelációt. A módszer hasznos információt nyújthat radioaktív hulladékok elhelyezésével kapcsolatos kutatásokhoz.

Köszönetnyilvánítás

Megköszönjük Kerkápoly Anikónak és Vajda Nórának az atomerőművi minták előkészítését.

Irodalom

1. G. FALKENBERG, O. CLAUSS, A. SWIDERSKI, TH. TSCHENTSCHER – X-Ray Spectrom. 30 (2001) 170–173
2. J. OSÁN, B. TÖRÖK, S. TÖRÖK, K.W. JONES – X-Ray Spectrom. 26 (1997) 37–44
3. M.C. DUFF, D.E. MORRIS, D.B. HUNTER, P.M. BERTSCH – Geochim. Cosmochim. Acta, 64 (2000) 1535–1550

MINTAELŐKÉSZÍTÉSI MÓDSZEREK ^{226}Ra ÁSVÁNYVIZEKBŐL INDUKTÍV CSATOLÁSÚ PLAZMA-TÖMEGSPEKTROMETRIÁVAL TÖRTÉNŐ MEGHATÁROZÁSÁRA

Varga Zsolt

MTA KK Izotópkutató Intézet

Myroslav V. Zoriy, J. Sabine Becker

Research Centre Jülich (Németország)

A hosszú felezési idejű mesterséges és természetes radionuklidok meghatározásának leghatékonyabb módszere napjainkban az indukció csatolású plazma-tömegspektrometria (ICP-MS). Jelen munkánk célja egy gyors és egyszerű módszer kidolgozása volt ^{226}Ra környezeti mintákból, elsősorban ásványvizekből történő meghatározására. Többféle minta-előkészítést megvizsgálva a leggyorsabb és legegyszerűbb módszernek egy saját készítésű, MnO_2 alapú membránszűrőn adszorpcióval történő dúsítás, majd ezt követő extrakciós kromatográfiás elválasztás ($\text{Sr.Resin}^{\text{TM}}$) kombinálása bizonyult. A módszer kimutatási határa (3σ) 0,02 fg/ml, a meghatározás pontossága 1,7%, precizitása (RSD, $n = 10$) 2,1%. A minta-előkészítés és mérés 5 minta esetén körülbelül 4 órát vesz igénybe, így lényegesen gyorsabb a hagyományosan használt radiokémiai módszereknél.

A ^{226}Ra jelentősége

Az ultranyomelem-tartományban előforduló hosszú felezési idejű radionuklidok pontos meghatározása az anali-

tika nehéz feladatai közé tartozik [1]. A mesterséges eredetű radionuklidok mellett (pl. ^{236}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am , ^{237}Np) különösen fontos a természetes radionuklidok, köztük a ^{226}Ra pontos és megbízható mérése. A természetben kis koncentrációban előforduló, az ^{238}U bomlásából származó, viszonylag hosszú felezési idejű ^{226}Ra ($T_{1/2} = 1600$ év) fontos nyomjelző geológiai és környezeti folyamatokban, például a magmatikus folyamatok jellemzésében [2], geokronológiában [3] és hidrológiai rendszerekben [4]. A szervezetbe került ^{226}Ra egy része – a kalciummal való metabolikus hasonlósága miatt – beépül a csontokba, ezért csak lassan ürül ki. Emiatt, valamint nagy fajlagos aktivitása ($3,7 \cdot 10^{10}$ Bq/g) és jelentős dóziszjárulék miatt kiemelt jelentősége van a sugárvédelmi és egészségügyi szempontoknak [5, 6]. Az Egyesült Államok Környezetvédelmi Ügynöksége (EPA) által a ^{226}Ra és a ^{228}Ra együttes mennyiségére ivóvizekben megszabott határérték 5 fg/ml. Kiemelten fontos az ásványvizek rádiumtartalmának figyelése, mivel azok rádiumtartalma magasabb, mint a felszíni vizeké, különösen akkor, ha az ásványvizet tartalmazó geológiai közeg urántartalma magas [7, 8]. A mérésre használt módszernek gyorsnak, egyszerűnek, megbízhatónak és – lehetőség szerint – minél olcsóbbnak kell lennie.

A III. Nukleáris Technikai Szimpóziumon (Budapest, 2004. december 2–3.) elhangzott előadás alapján.