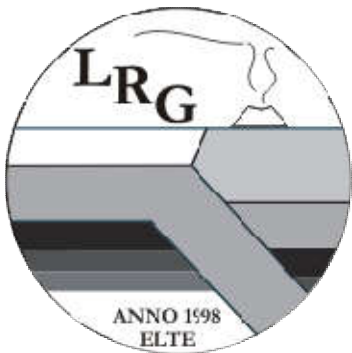


Alacsony háttérű kamra alkalmazása környezeti minták radioaktivitásának meghatározására

Völgyesi Péter^{1,2}, Szabó Zsuzsanna³, Kis Zoltán⁴,
Szabó Csaba², Judith Pena Salupeto Dembo²

¹*Sugárbiztonsági Laboratórium, Energiatudományi Kutatóközpont, MTA*

²*Litoszféra Fluidum Kutató Laboratórium, ELTE TTK*

³*Geokémiai és Laboratóriumi Főosztály, MFGI*

⁴*Nukleáris Analitikai és Radiográfiai Laboratórium, Energiatudományi Kutatóközpont, MTA*

XLI. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam
2016. április 26-28, Hajdúszoboszló

Bevezetés

- ❑ Környezeti minták
gamma-spektrometriai mérése
 - Kis aktivitás
- ❑ Méréstechnikai kihívások
(pl. minta mennyiség, geometria, homogenitás)
- ❑ Életünk ~70%-át beltérekben töltjük
 - Építőanyagok szerepe (minősítés)
- ❑ Alacsony háttérű kamra
- ❑ 2 esettanulmány
 - I. Magyarország: erőművi salak minták
 - Szekuláris egyensúly vizsgálat,
Méréstechnika, ^{226}Ra meghatározás
 - II. Angola: vályog minták
 - Első radiometriai felmérés



Talaj mintavétel (Ajka)



Talaj szelvény (Angola)



Alacsony háttérű kamra

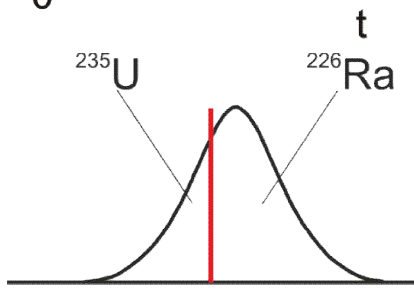
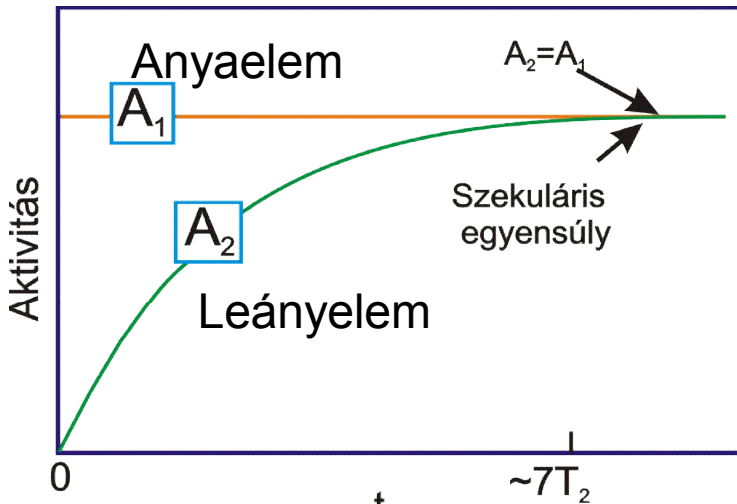
I. Erőművi salakok vizsgálata

Szekuláris egyensúly
Méréstechnikai kihívások, fejlesztés
 ^{226}Ra meghatározás

Bevezetés

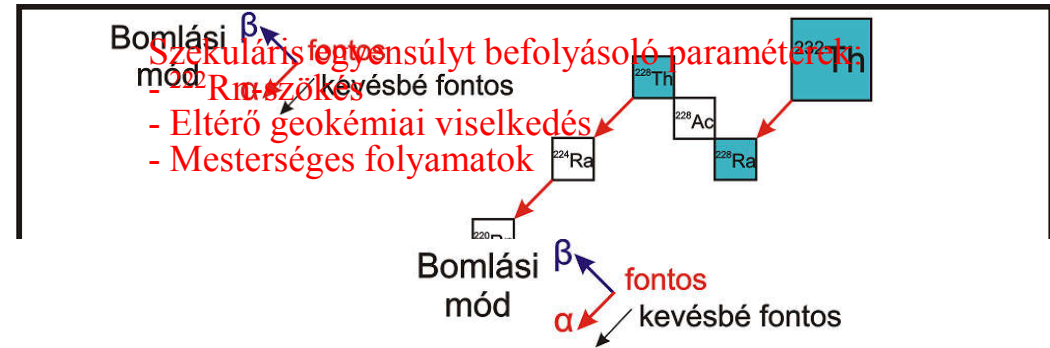
Szekuláris egyensúly:

- $A_i = N_i \cdot \lambda_i$ ill. $A_j = N_j \cdot \lambda_j$
- $T_2 \ll T_1, A_2(0) = 0$
- 5-7 felezési idő
- $A_i = A_j$ bármely (i, j)-re



Feltételezés:

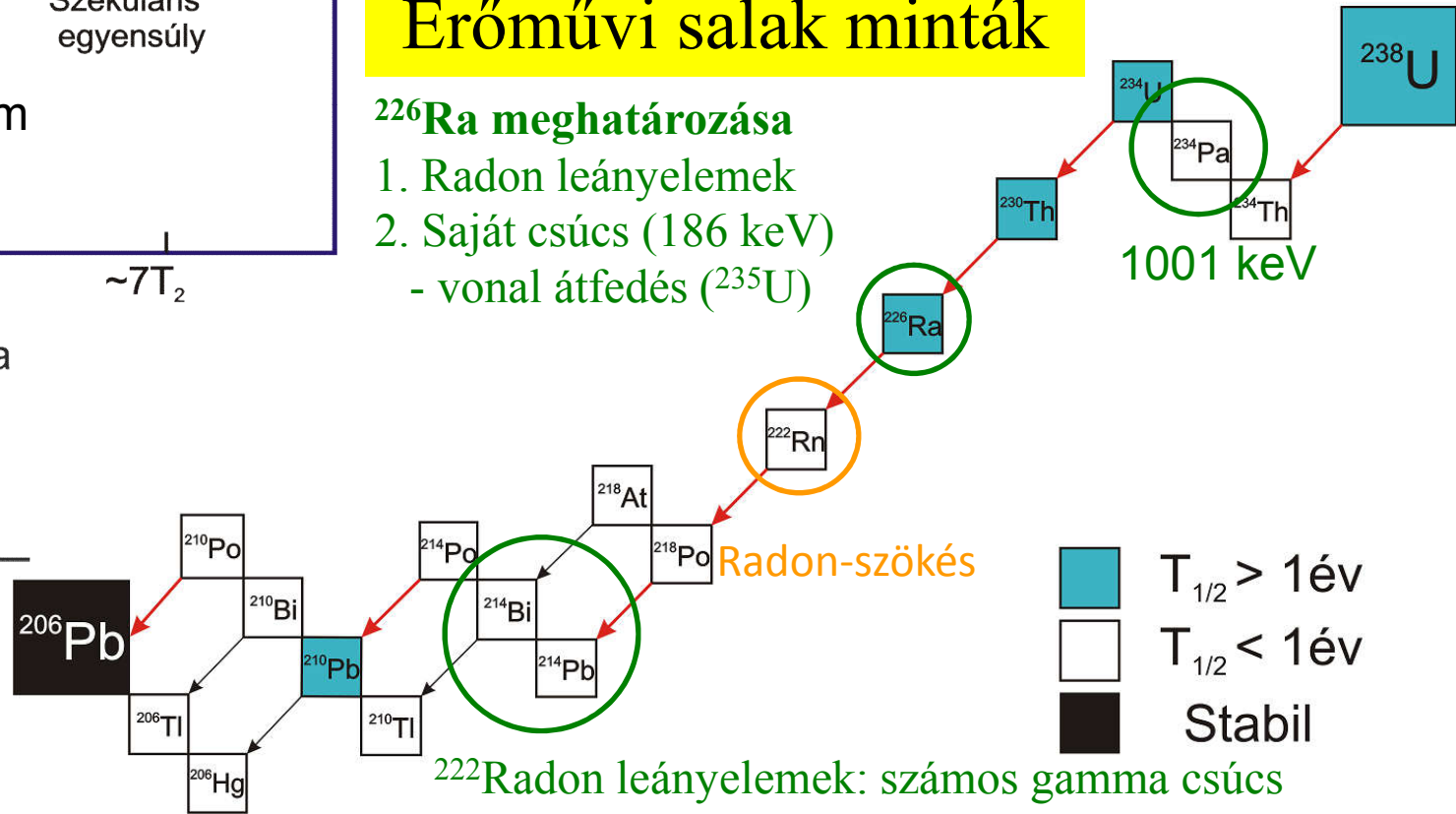
1. Szekuláris egyensúly a ^{238}U és a ^{226}Ra között
2. Természetes urán izotóparány ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$)



Erőművi salak minták

^{226}Ra meghatározása

1. Radon leányelemek
 2. Saját csúcs (186 keV)
- vonal átfedés (^{235}U)



Erőművi salak keletkezése és felhasználása



Szén

Változatos U- és Ra-tartalom:
néhány g/t – több száz g/t

Erőművi salakok felhasználása:

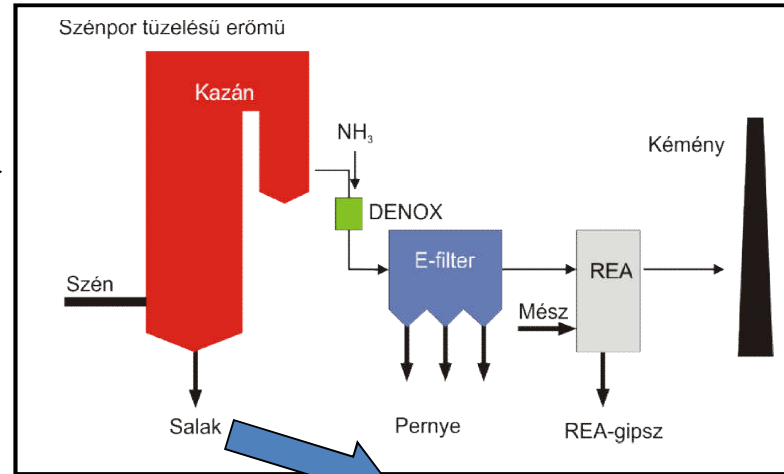
Térkitöltő-, vagy szigetelőanyag

Adalékanyag

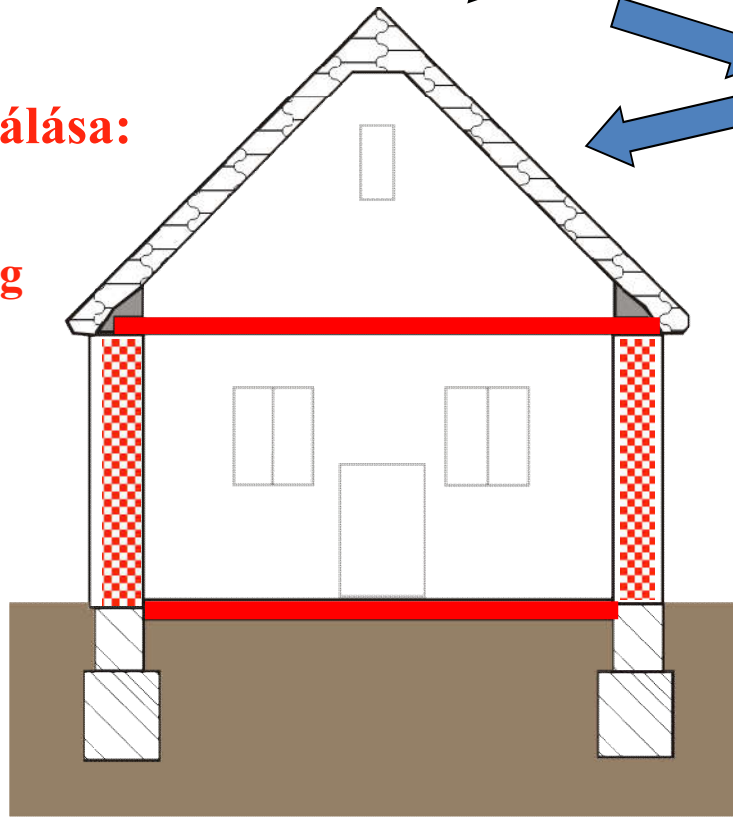
Építőanyagok minősítése:

Indexek (Ra_{eq} , I , H_{ex} , H_{in})

Ra-tartalom



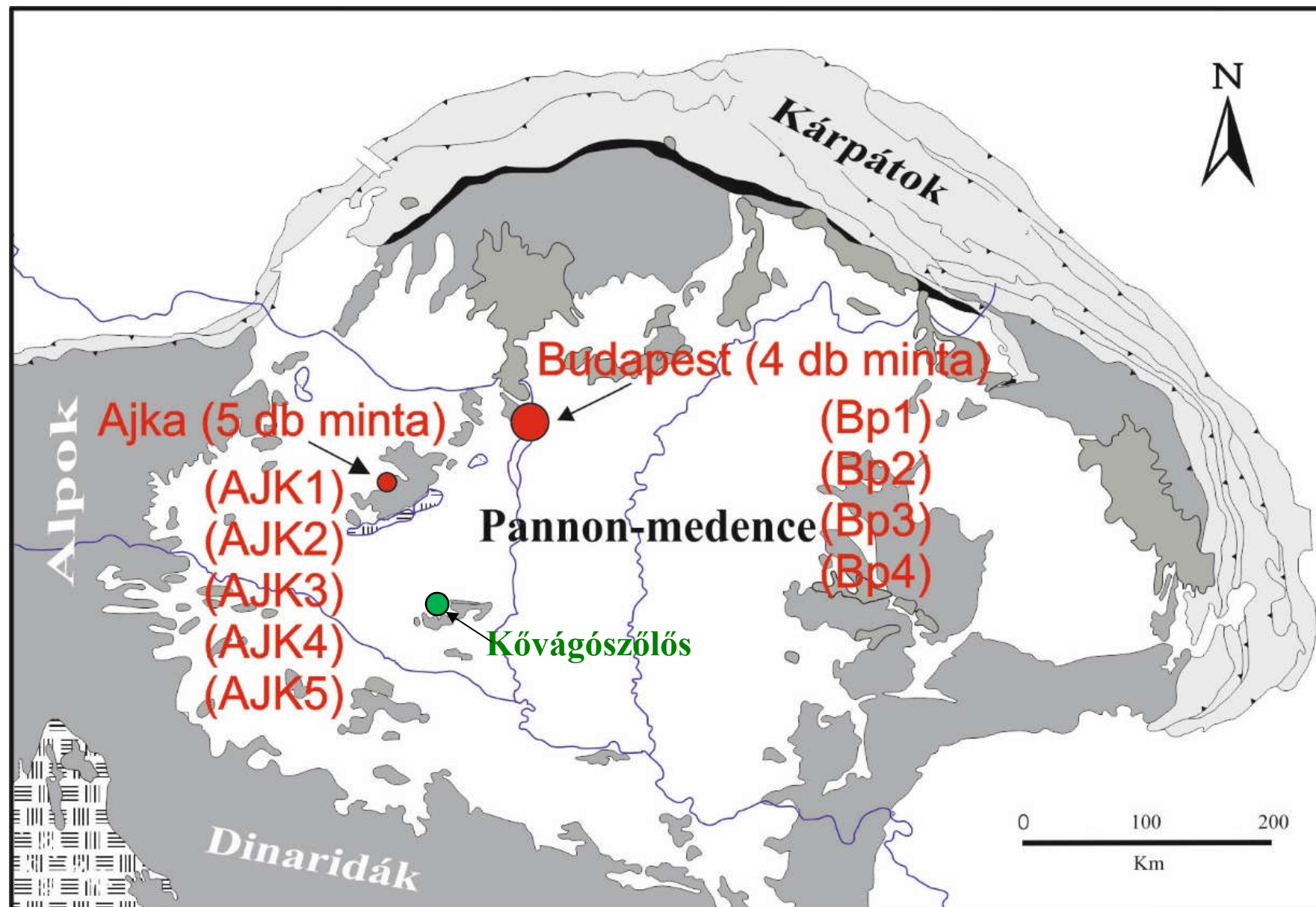
Égetés, dúsulás



Salak
Nagy U- és Ra-tartalom

Felhasznált minták

Lakossági felkérés



A mérőrendszer főbb kihívásai

1. Radon-zártság:

- nemesgáz
- mintatartó anyaga

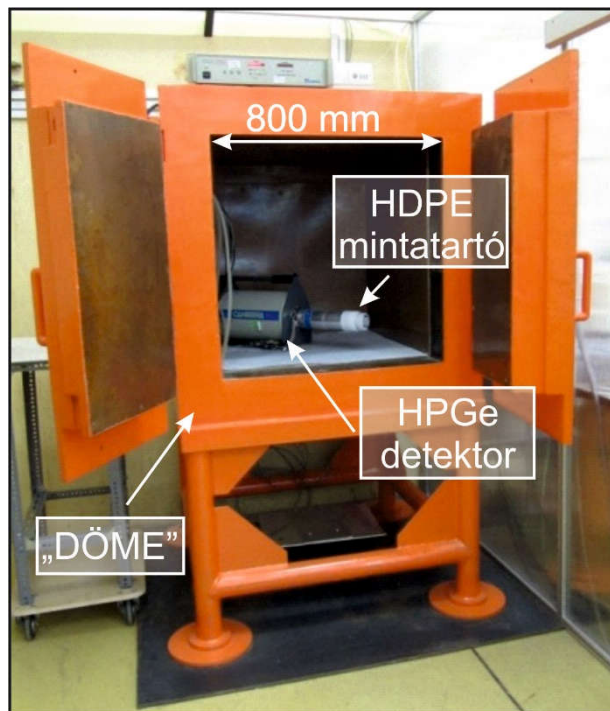
2. Teljes energiás abszolút hatásfok meghatározása:

- forrás: kiterjedt, közeli
- pontszerű forrás eredményei közvetlenül nem használhatók

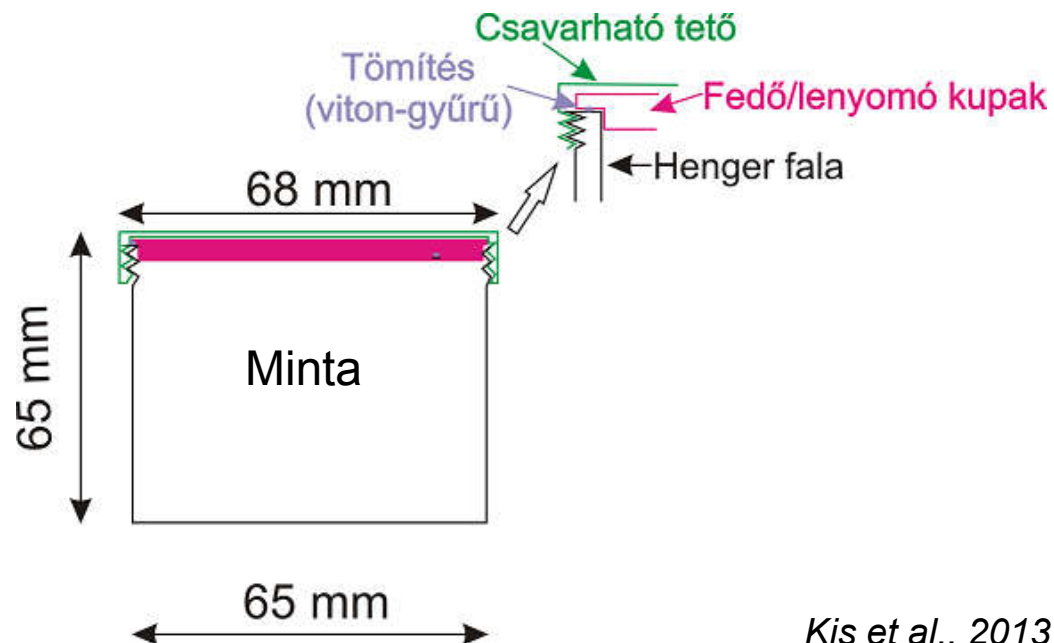


3. A 186 keV-es csúcs megbízhatóan használható-e a ^{226}Ra -tartalom pontos meghatározására

A kifejlesztett mérőrendszer



- Mintatartó: HDPE
 - (High Density Polyethylene)
- Tömítés: Viton O-ring
 - (fluorocarbon elastomer)



Radon-zártság meghatározás HDPE mintatartóra

- Elméleti telítődési görbe:

$$C = (C_{eq} - C_0) (1 - \exp(-\lambda t)) + C_0$$

- Kompartment-modell:

$$\lambda(\text{bomlás}) = 1.259 \cdot 10^{-4} \text{ min}^{-1}$$

$$\lambda(^{222}\text{Rn}) = \lambda(\text{bomlás}) + \lambda(\text{szivárgás})$$

$$\text{ha } \lambda(\text{szivárgás}) = 0.02 \cdot \lambda(\text{bomlás})$$

$$\text{akkor } \lambda(^{222}\text{Rn}) = 1.284 \cdot 10^{-4} \text{ min}^{-1}$$

- Konfidencia intervallum:

$$\lambda(\text{bomlás}) + 3.182 \cdot \text{std.err.} = 1.282 \cdot 10^{-4} \text{ min}^{-1}$$

$$P[\lambda(\text{szivárgás}) < \lambda(\text{bomlás}) \cdot 2\%] > 95\%$$

A mintatartó gyakorlatilag radon-zártnak tekinthető

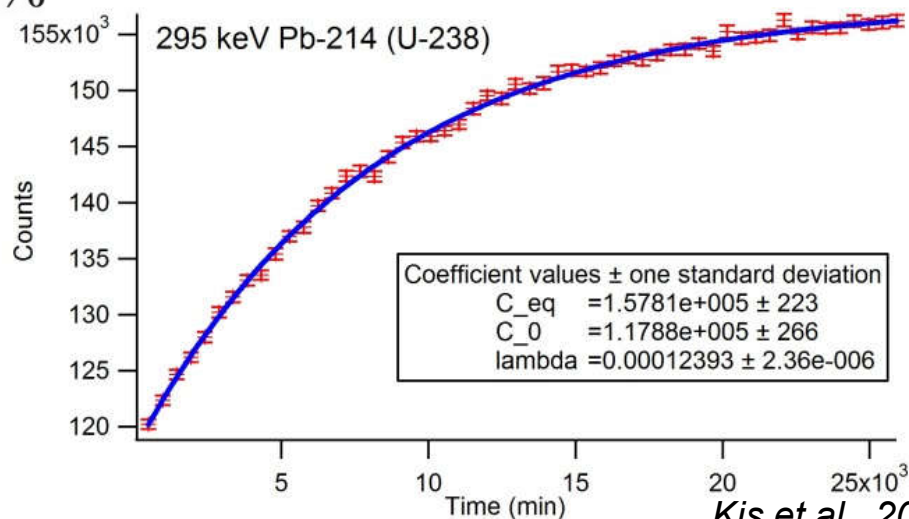
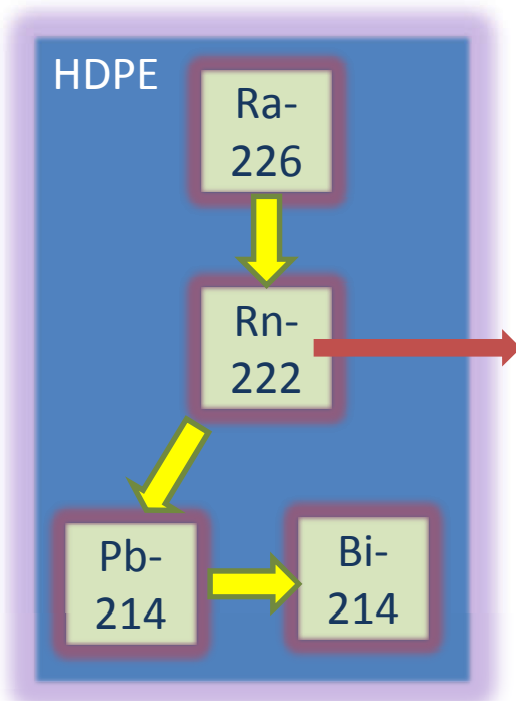
- Telítődési görbék mérése, illesztése

Kővágószőlősi minta (8000 Bq/kg ^{226}Ra)

Lezárást követő 18 napon át, 6 óránként

^{222}Rn leányelemek (^{214}Pb , ^{214}Bi) mérése

λ : görbeillesztési paraméter



Kis et al., 2013

Abszolút hatások meghatározás HDPE mintatartóra

Hatások meghatározás kiterjedt, közeli forrásra:

Mérés: távoli standard pontforrásokkal

- ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{207}Bi , ^{226}Ra , ^{241}Am

távolság geometria: 167mm

- valódi koincidencia: elhanyagolható

Számítás: közeli kiterjedt forrásra

- fenti mérési adatok EFFTRAN 1.2-be (Excel)

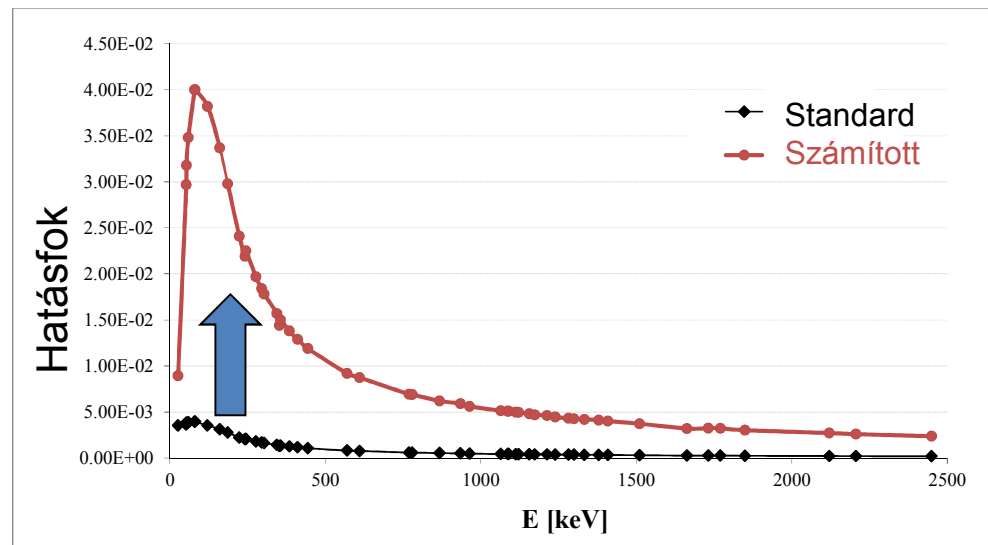
- egyéb adatok: detektor, pont ill. kiterjedt forrás

- Monte Carlo szimuláció alapú adatbázis

- valódi koincidencia figyelembevétele

- hatások transzfer

EFFTRAN program: sikeres alkalmazás a hatások meghatározására közeli, kiterjedt geometrián



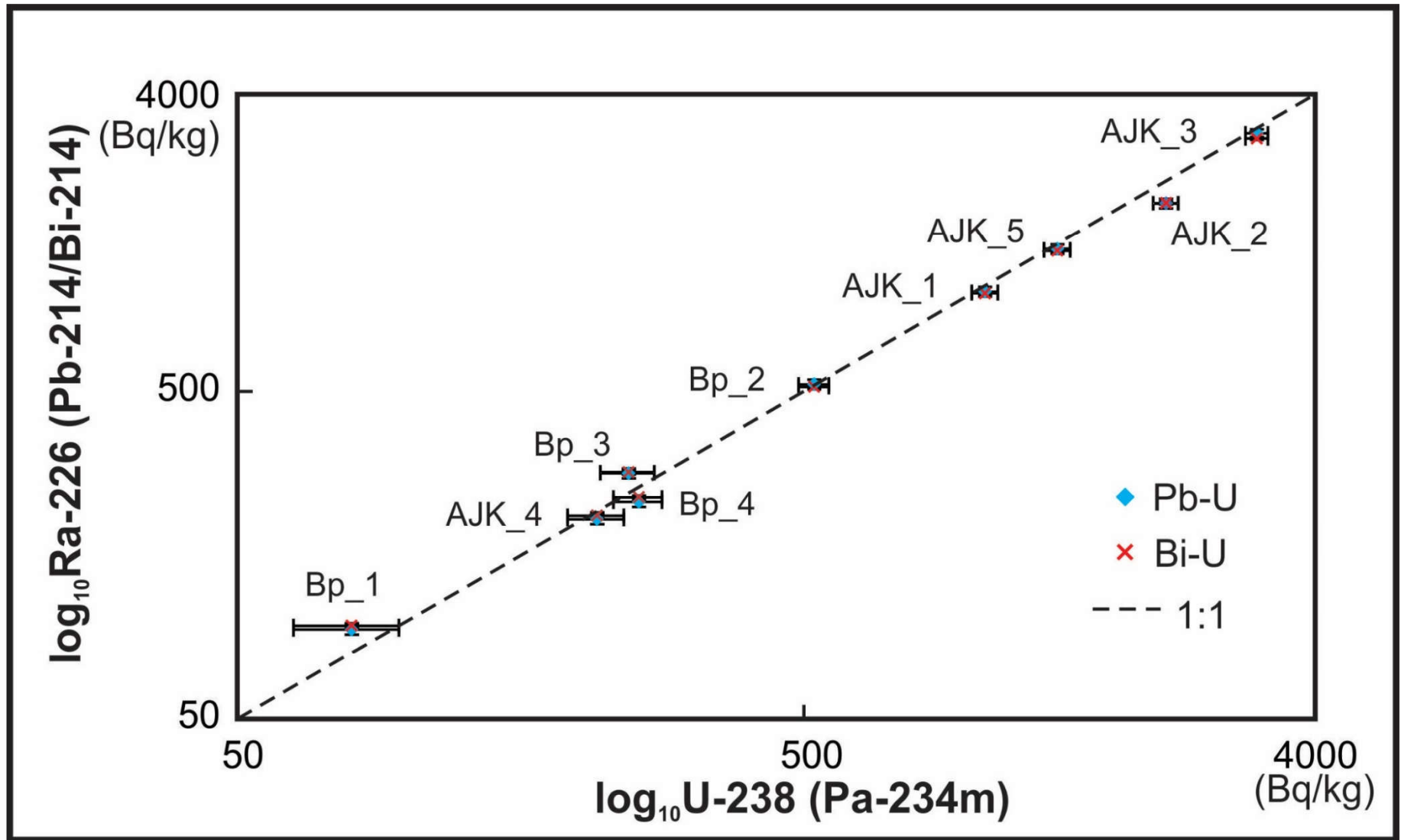
Ellenőrzés: egyvonalas nuklidok

- standard oldat HDPE-ben: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{54}Mn

- közeli geometria: mérés és számítás

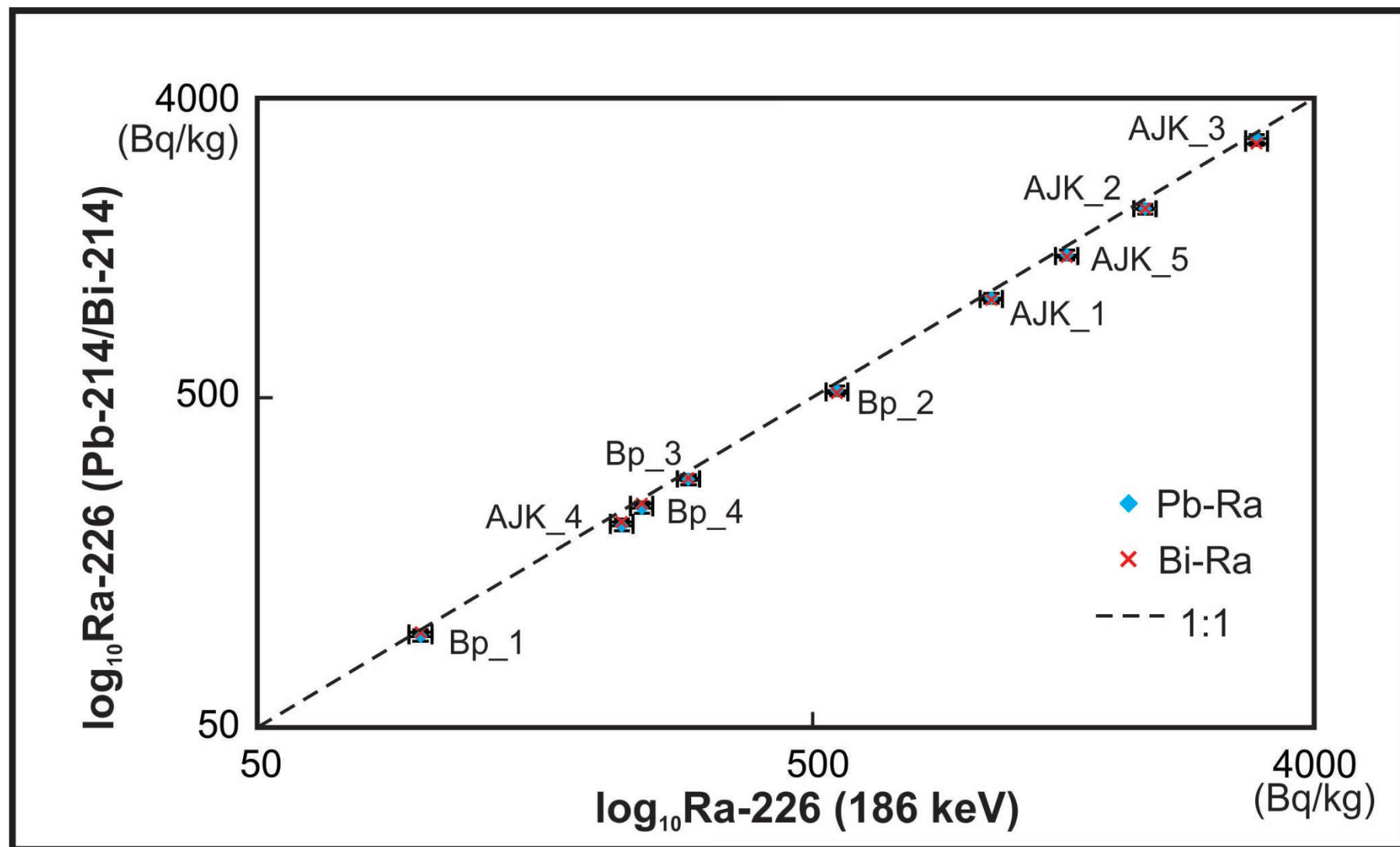
- mért / számolt : $\sim 1,02 - 1,05 \rightarrow \sim 2\text{-}5\%$ szisztematikus eltérés $\rightarrow$ korrekciós tényező

Salak minták eredményei



A kapott értékek hibahatáron belül megegyeznek,
az ^{238}U és a ^{226}Ra szekuláris egyensúlyban vannak

Salak minták eredményei – 186 keV csúcs használata



Urán aktivitás koncentráció mérések eredményei

Súlyozott átl.	A_{U235}/A_{U238}	$\pm$
Salakok (Budapest)	0.0496	0.0085
Salakok (Ajka)	0.0455	0.0041
Összes salak	0.0466	0.0030
Természetes (Ebaid et al., 2005)	0.0462	

Természetes izotóp arány

Szekuláris egyensúly ^{226}Ra és ^{238}U között

Igazoltuk, hogy:

186 keV csúcs használható a salak minták ^{226}Ra -tartalmának pontos meghatározására (azonos geokémiai közegből származó minták, gyors, pontos)

Salak minták ^{226}Ra tartalma (186 keV alapján)

Minta	Ra (Bq/kg)	$\pm$ S.D.
AJK1	1049	48
AJK2	1991	91
AJk3	3152	144
AJK4	227	11
AJK5	1435	66
Bp1	98	5
Bp2	553	25
Bp3	299	14
Bp4	246	11

Világátlag
50 (Bq/kg)
(UNSCEAR, 1993)

Ajkai salakok:
578-2893 (Bq/kg)
(Somlai et al, 2006)

2233 $\pm$ 54 Bq/kg
Budapesti salak minta
(Szabó et al., 2013)

Ajkai minták: nagyobb értékek

- Helyi szén

Budapesti minták: kisebb értékek

- DE: Ismeretlen eredet

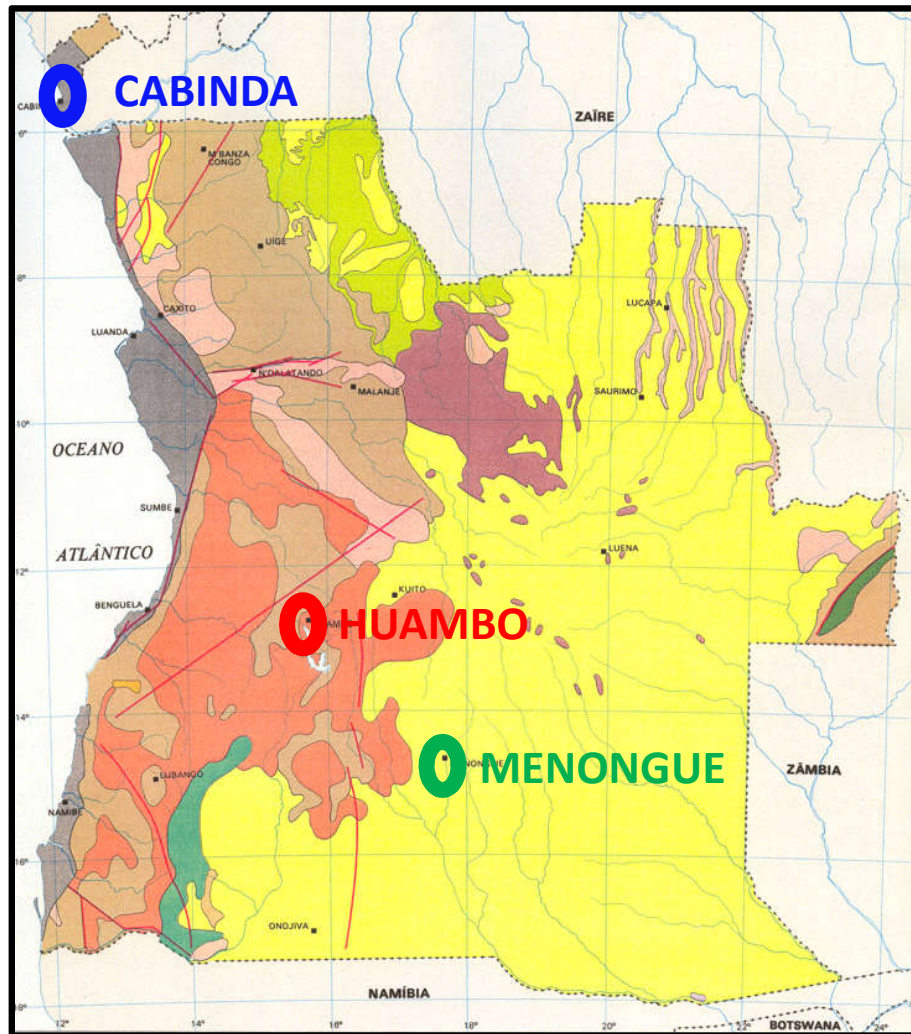
Budapesti salak minták vizsgálata:
 Fontos terület

II. Angolai vályog építőanyagok

Gamma-spektrometria: ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K
Építőanyagok minősítés



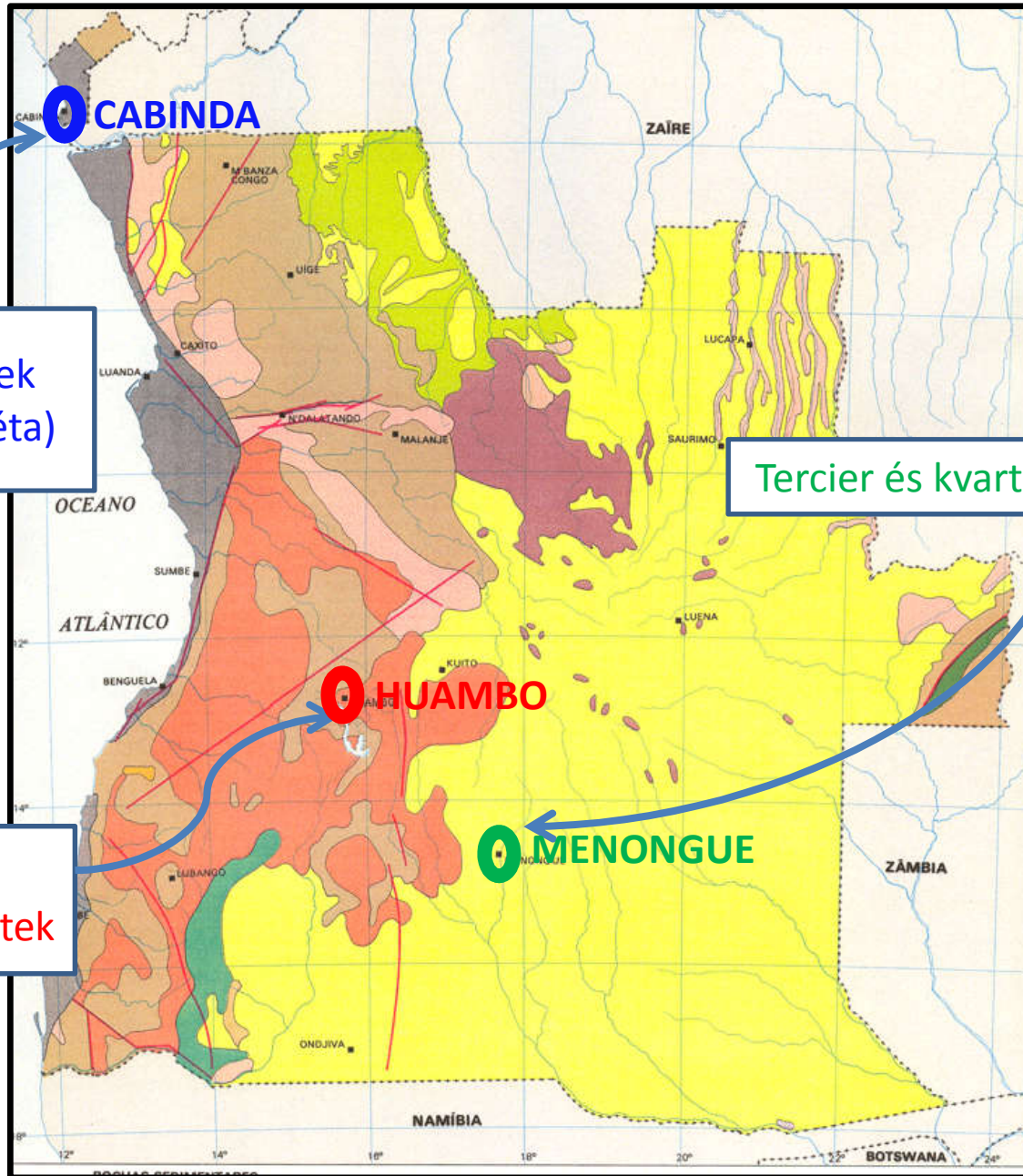
Vizsgált terület



Népesség: ~20 millió fő
Terület: ~1,2 millió km²



Vizsgált terület - Geológia



Tengeri üledékek
(pleisztocén-kréta)

Tercier és kvarter üledékes kőzetek

Archaikumi és
proterozoós kőzetek

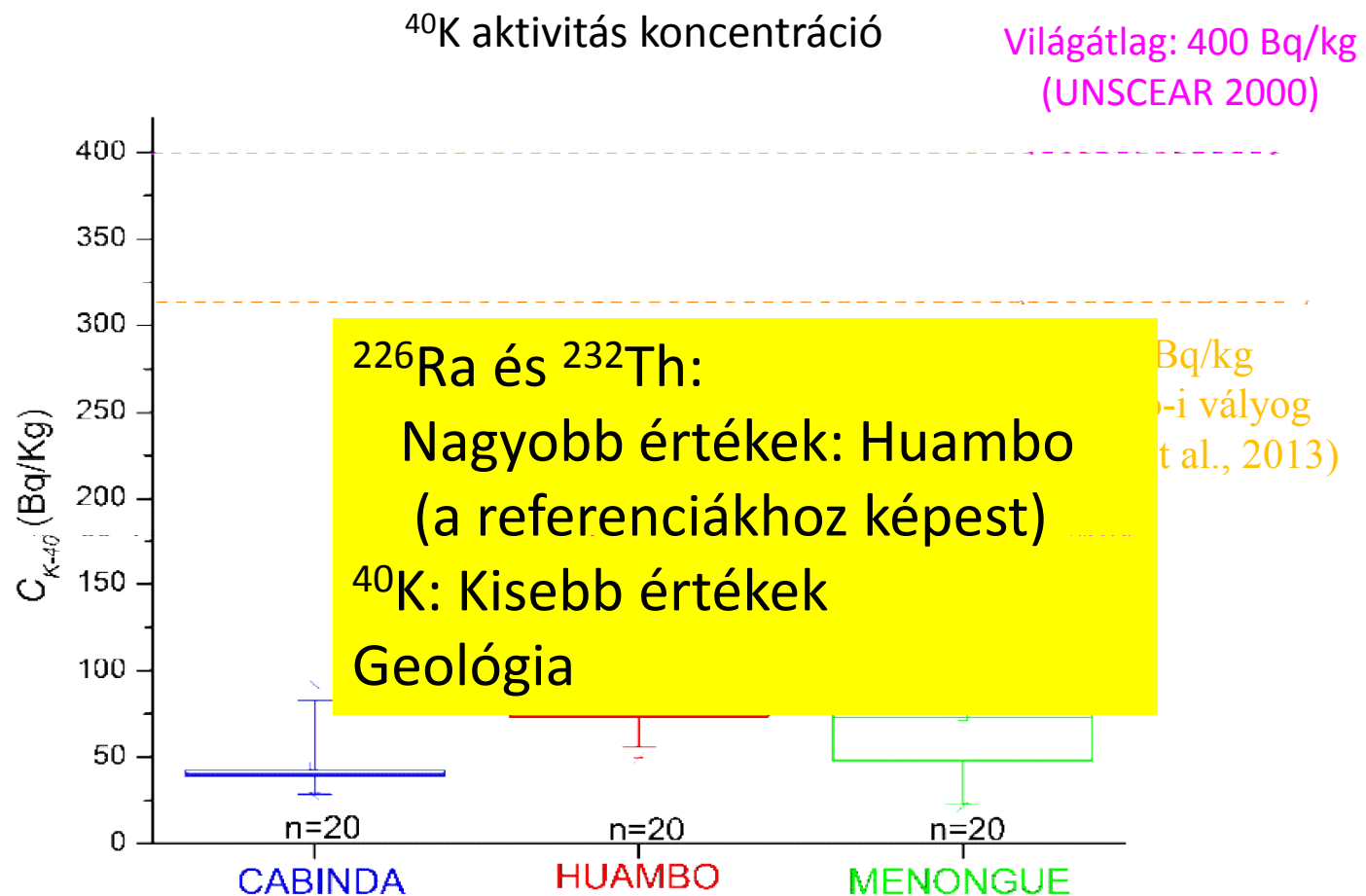
Területenként
20 minta

Geológia

Talaj

Építőanyag

Eredmények – Aktivitás koncentráció



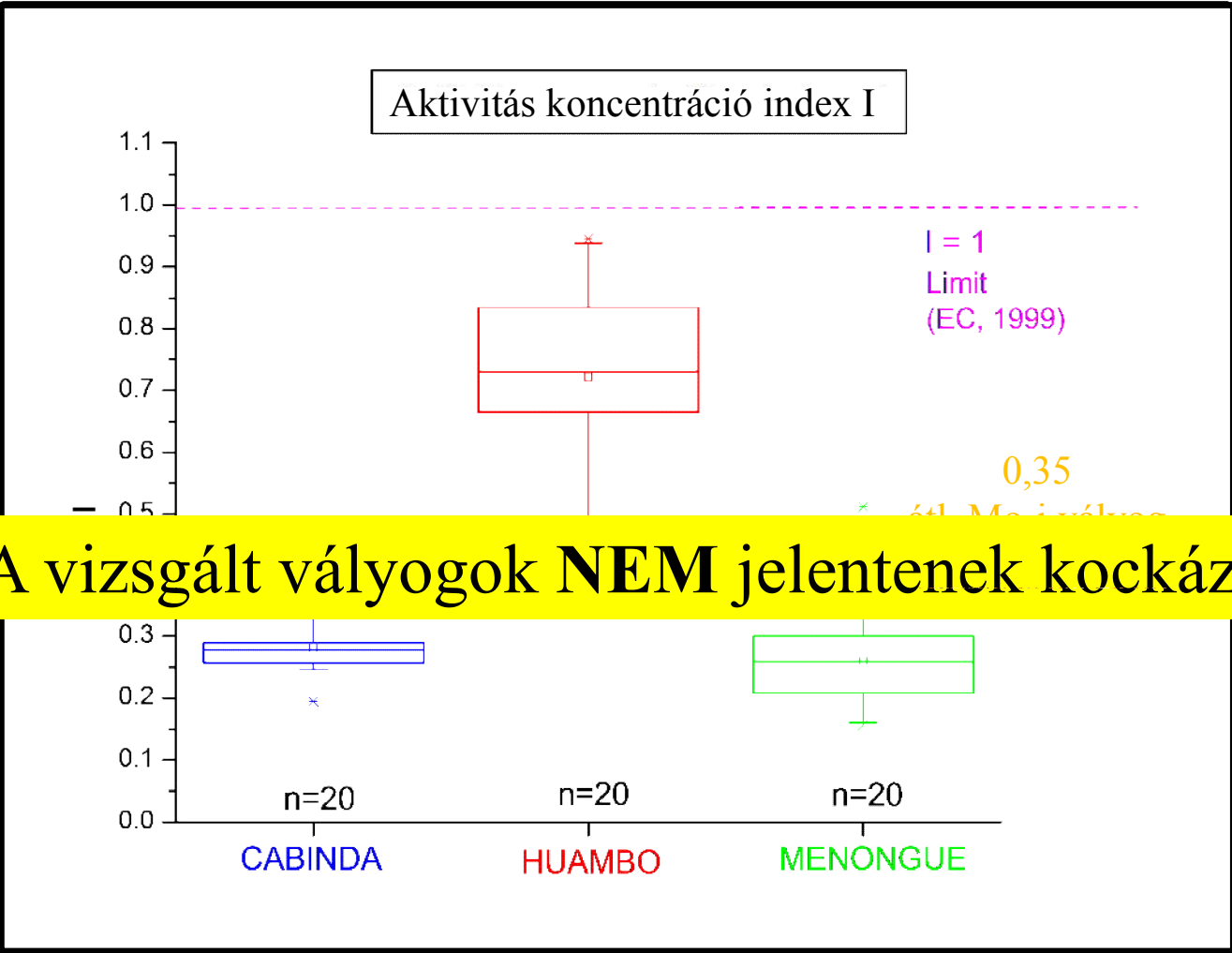
C (Bq/Kg)	CABINDA			HUAMBO			MENONGUE		
	M	Sd	Mdn	M	Sd	Mdn	M	Sd	Mdn
Ra-226	26	7	25	87	20	89	27	10	25
Th-232	36	5	36	81	21	82	30	10	28
K-40	45	17	40	82	15	87	73	40	67

Eredmények – Minősítő indexek

Rádium Ekvivalens
 $Ra_{eq} = C_{Ra} + C_{Th}/4 + C_{K}/40$

(Hamilton, 1999)

Index (I)
 $I = \frac{C_{40K}}{100 Bq/kg}$



A vizsgált vályogok **NEM** jelentenek kockázatot

Házépí

$I \leq 1$
 anyagok
 $I \leq 6$

Területek	Rádium ekvivalens index (Bq/Kg)			Aktivitás koncentráció index		
	M	Sd	Mdn	M	Sd	Mdn
Cabinda	81	13	79	0.3	0.04	0.3
Huambo	209	45	210	0.7	0.15	0.7
Menongue	79	24	73	0.3	0.08	0.3

Konklúziók

Mérőrendszer:

1. Mintatartó: gyakorlatilag radon-zárt
2. EFFTRAN hatásfok transzfer sikeres (közeli, kiterjedt geometria)

Magyarországi salak minták:

3. Természetes urán izotóp arány ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$)
4. Szekuláris egyensúly: ^{226}Ra - ^{238}U
5. 186 keV-os csúcs alkalmas a ^{226}Ra pontos meghatározására
6. Salak minták a Fővárosban

Angolai vályog minták

7. Huambo: nagyobb értékek ^{232}Th és ^{226}Ra , ^{40}K kisebb mindenhol
8. Geológia szerepe
9. Első angolai radiometriai vizsgálat

**Az alacsony háttérű kamra és a hozzá tartozó mérőrendszer
alkalmas környezeti minták részletes tanulmányozására**

A témában megjelent publikációk

1. Szabó, Zs., Völgyesi, P., Nagy, H. É., Szabó, Cs., Kis, Z. & Csorba, O. (2013)

Radioactivity of natural and artificial building materials – a comparative study.

Journal of Environmental Radioactivity, 118, 64–74.

2. Kis, Z., Völgyesi, P. & Szabó, Zs. (2013)

DÖME - revitalizing a low-background counting chamber and developing a radon-tight sample holder for gamma-ray spectroscopy measurements.

Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 298, 2029–2035.

3. Völgyesi, P., Kis, Z., Szabó, Zs. & Szabó, Cs. (2014)

Using the 186 keV peak for ^{226}Ra activity concentration determination in Hungarian coal slag samples by gamma-ray spectroscopy.

Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 302, 375–383.

Köszönöm a figyelmet!

Köszönettel tartozunk:

- Gméling Katalin, Révay Zsolt, Takács Kálmán
Szentmiklósi László, Belgya Tamás, Vajda Nóra
- Király Csilla, Zacháry Dóra,
Jordán Győző, Forray Viktória, Kulcsár Lívია
- Illési Oszkár, Johannidesz Erzsébet
Csóka Dezső
- Ajkai és budapesti lakások tulajdonosai
- Rege, Agostinho, Adelaide, Lelo, Mestre, Bruno
- Bemba, Nangueve, Tio Bino
- Sr Sapundo, Sr David, Fifi, António Dembo
- FAA
- ELTE TTK Környezettudományi Doktori Iskola
- Magyar Fejlesztési Bank „Habilitas” ösztöndíj
- MTA EK
- XLI. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam



Építőanyagok radiológiai minősítése

- Indexek:

- Rádium ekvivalens (Ra_{eq})

$$Ra_{eq} = C_{Ra-226} + 1,26 \cdot C_{Th-232} + 0,086 \cdot C_{K-40}$$

Házépítés: $Ra_{eq} < 370 \text{ Bq/kg}$

*Beretka and Mathew,
1985, Khatibeh et al., 1997*

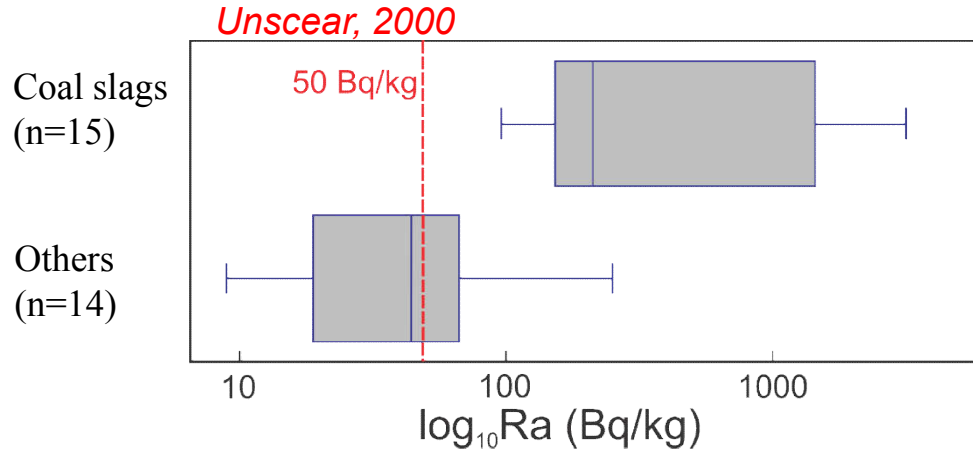
- Aktivitás koncentráció index (I)

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

Nagy mennyiségben használt anyagok (beton, tégl) esetén: $I \leq 1$

Kis mennyiségben használt anyagok (pl: cserép, [salak](#)) esetén: $I \leq 6$

^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K contents



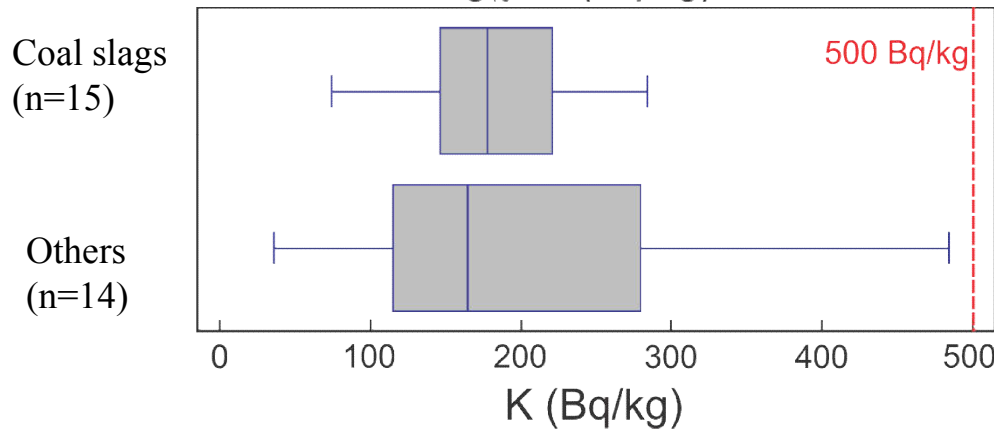
Ajka: 1571 Bq/kg (avg.), (227±11 – 3152±144 Bq/kg)

Budapest: 384 Bq/kg (avg.), (96±5 – 2233±54 Bq/kg)

One high value from Budapest: 2233±54 Bq/kg

High ^{226}Ra -contents in coal slag samples

In situ gamma dose rates: similar results

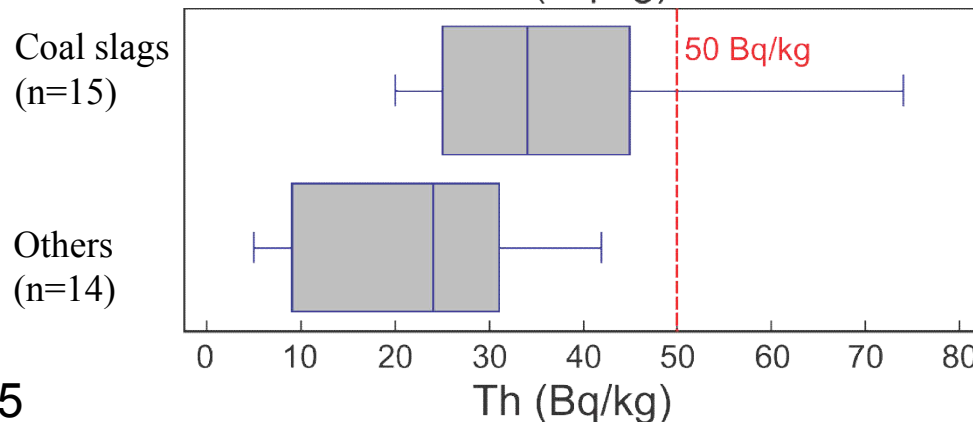


Brick samples: 473±18 Bq/kg

484±17 Bq/kg

^{40}K and ^{232}Th :

Comparable with international values

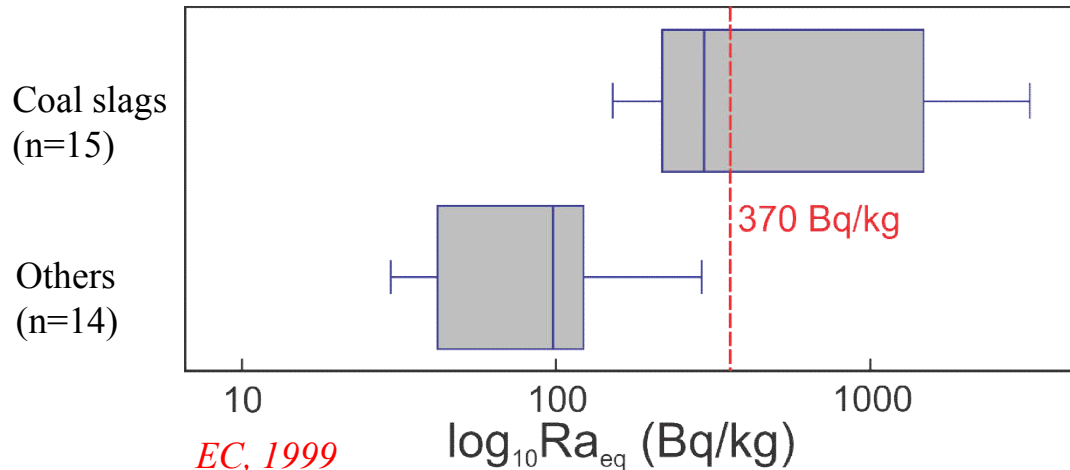


*Others:
Gas silicates, Bricks,
Concrete of block of flats,
Coal slag concretes*

Szabó et al., 2013

Indices and dose estimations

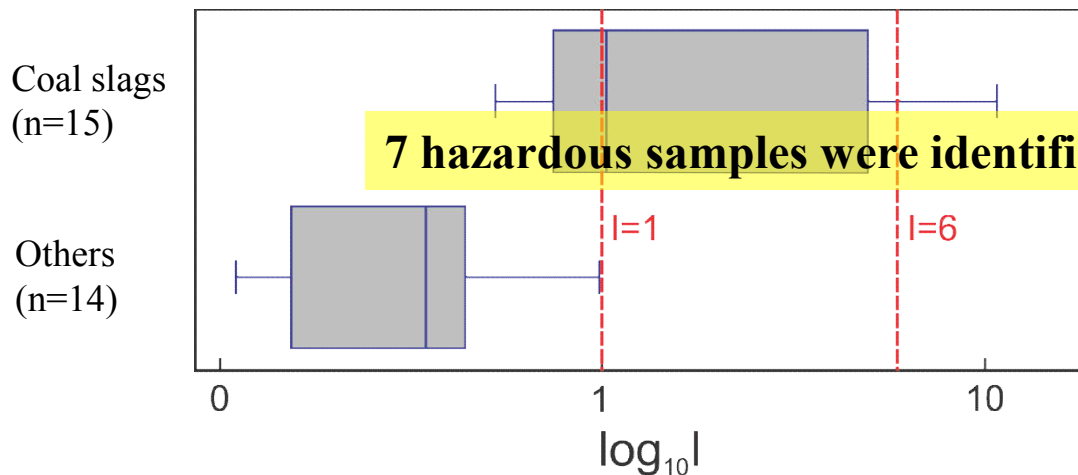
Beretka and Mathew, 1985



$$Ra_{eq} = C_{226Ra} + \frac{10}{7} C_{232Th} + \frac{10}{130} C_{40K}$$

>370 Bq/kg: 6 coal slag samples

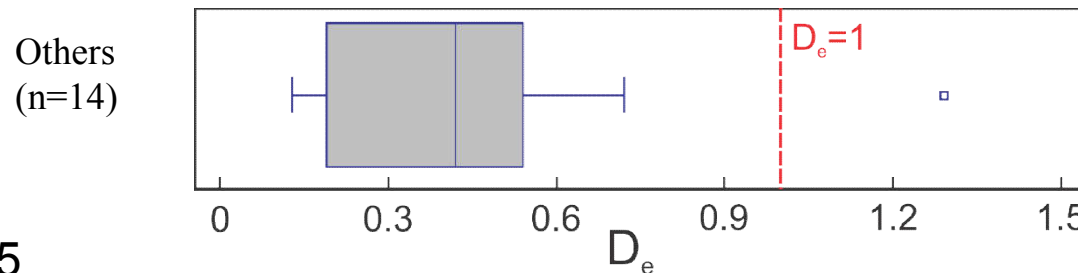
EC, 1999



$$I = \frac{C_{226Ra}}{300 \text{ Bq kg}^{-1}} + \frac{C_{232Th}}{200 \text{ Bq kg}^{-1}} + \frac{C_{40K}}{3000 \text{ Bq kg}^{-1}} \leq 1$$

>1: one coal slag concrete sample

>6: 3 coal slag samples



$$D_a = aC_{226Ra} + bC_{232Th} + cC_{40K} \quad D_s = 10^{-6} OFD_a$$

Materials in bulk amounts

>1 mSv (reference level):

1 coal slag concrete

Sampling week	Weekly specimen	Radioactivity in Bq kg ⁻¹ ± expanded uncertainty % (<i>k</i> = 2)				
		²³⁸ U	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²³² Th	⁴⁰ K
1st	Lignite	332 ± 11	350 ± 4.3	357 ± 5.6	24 ± 7.1	207 ± 6.6
2nd	Lignite	248 ± 14	331 ± 4.3	N/A	23 ± 6.2	198 ± 5.4
3rd	Lignite	291 ± 10	309 ± 4.2	326 ± 5.7	20 ± 6.7	165 ± 6.1
4th	Lignite	N/A	346 ± 4.0	N/A	19 ± 6.6	152 ± 5.4
5th	Lignite	309 ± 11	344 ± 4.3	352 ± 5.4	20 ± 7.1	148 ± 6.6
6th	Lignite	352 ± 9	395 ± 4.2	409 ± 5.5	21 ± 6.6	169 ± 6.3
Mean ± SD (%)	Lignite	306 ± 4.2	346 ± 2.4	361 ± 9.6	19 ± 8.5	173 ± 14
1st	Fly-ash	N/A	873 ± 4.2	N/A	57 ± 4.9	489 ± 4.6
2nd	Fly-ash	962 ± 6.4	943 ± 4.3	1162 ± 4.8	52 ± 6.1	425 ± 5.8
3rd	Fly-ash	899 ± 6.0	889 ± 4.2	1028 ± 4.8	50 ± 5.8	405 ± 5.0
4th	Fly-ash	1051 ± 5.8	1028 ± 4.3	1322 ± 4.7	52 ± 5.6	403 ± 5.0
5th	Fly-ash	944 ± 7.1	900 ± 4.2	1120 ± 5.0	55 ± 4.4	485 ± 4.7
6th	Fly-ash	N/A	794 ± 4.0	N/A	53 ± 4.9	516 ± 6.3
Mean ± SD (%)	Fly-ash	964 ± 6.6	904 ± 8.6	1158 ± 11	53 ± 4.7	454 ± 11
1st	Bottom ash	N/A	583 ± 4.2	N/A	43 ± 5.1	433 ± 4.6
2nd	Bottom ash	675 ± 5.6	654 ± 4.2	273 ± 7.0	45 ± 5.4	417 ± 5.0
3rd	Bottom ash	677 ± 9.5	661 ± 4.3	285 ± 7.2	41 ± 4.5	334 ± 5.0
4th	Bottom ash	N/A	722 ± 4.2	N/A	44 ± 5.0	367 ± 4.8
5th	Bottom ash	715 ± 7.6	743 ± 4.2	289 ± 7.3	47 ± 5.3	419 ± 5.1
6th	Bottom ash	658 ± 8.3	611 ± 4.2	253 ± 7.6	44 ± 5.4	460 ± 4.8
Mean ± SD (%)	Bottom ash	681 ± 3.5	662 ± 9.3	275 ± 5.9	44 ± 4.6	405 ± 11

N/A; not applicable.

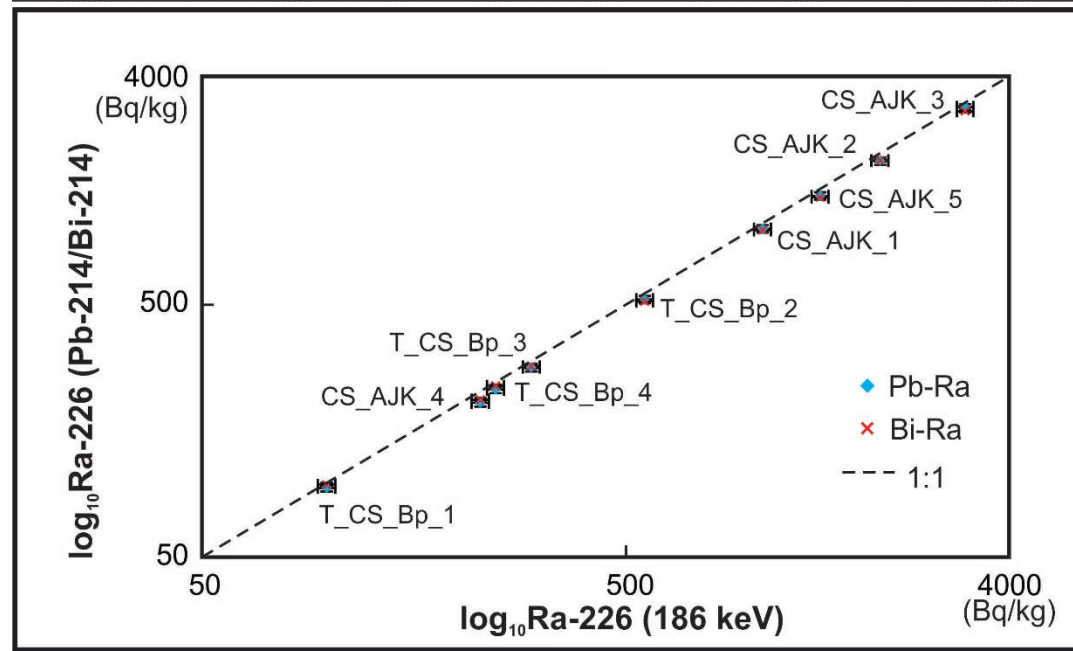
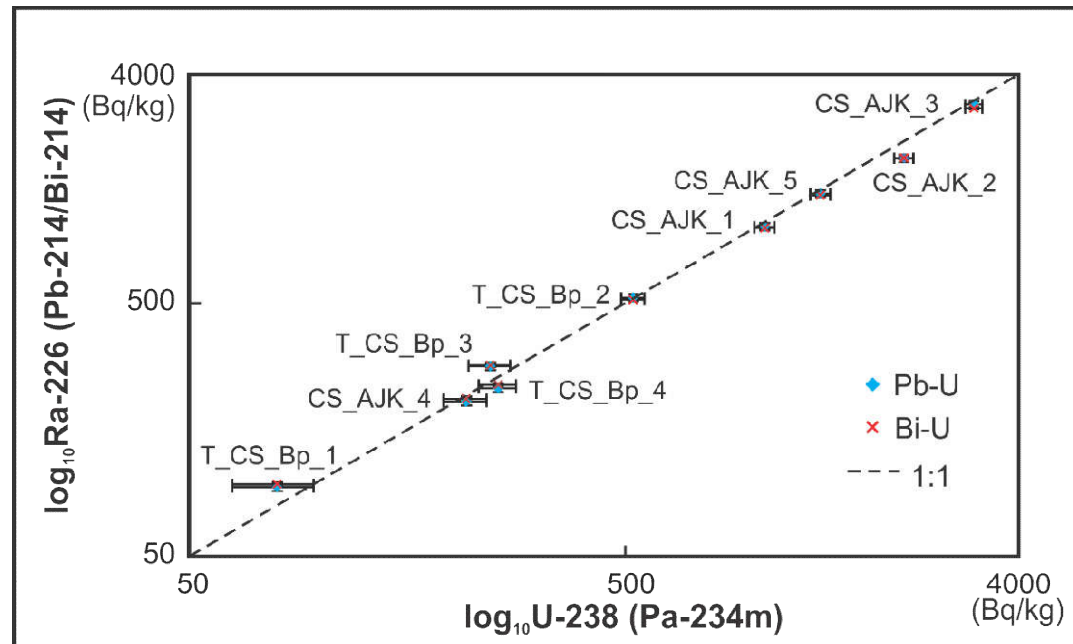
Uranium activity concentration ratio and Secular equilibrium in coal slag samples

Weighted avg.	A_{U235}/A_{U238}	$\pm$
Coal slag Budapest	0.0496	0.0085
Coal slag Ajka	0.0455	0.0041
Coal slag All	0.0466	0.0030
Natural (Ebaid et al., 2005)	0.0462	

Natural isotopic ratio

**Secular equilibrium
between ^{226}Ra and ^{238}U**

**Validation:
 ^{226}Ra : 186 keV peak**



^{226}Ra meghatározása a 186 keV-es csúcsból

- A 186 keV-es ^{226}Ra csúcs: figyelembe kell venni az ^{235}U részarányát
- Érvényes az urán izotóparány és a szekuláris egyensúly is fennáll ^{238}U -ra és ^{226}Ra -ra
- Ezt az esetet számos munka feltételezi és használja a 186 keV-es csúcsot a ^{226}Ra meghatározására:
 - Egyszerűbb
 - Nem kell radonszökés-mentes kamra, nem szükséges egyensúlyi állapot
 - Mintamennyiség

Ebaid et al, 2005:

^{226}Ra : 58.3%

^{235}U : 41.7%

