

Eötvös Loránd Tudományegyetem

Természettudományi kar

Környezettudományi Centrum

**POTENCIÁLIS RÁDIUM-FORRÁSOK
ANYAGVIZSGÁLATA A MOLNÁR JÁNOS-
BARLANGBAN**

SZAKDOLGOZAT



Készítette:

BLÁZSOVICS PÉTER

KÖRNYEZETTUDOMÁNY MESTERSZAKOS HALLGATÓ

Témavezető:

Dr. Horváth Ákos

egyetemi docens

Budapest

2017.

Tartalomjegyzék

1. Célkitűzés.....	4
2. Radioaktív elemek a környezetünkben	4
2.1. Bevezetés	4
2.2. Bomlási sorok	6
2.3. Sugárvédelem	7
2.4. A radon és a rádium mozgása a természetben	9
3. Budai Karszt bemutatása és a biofilmek rádiumtartalma.....	11
4. Mintavételezési eljárások.....	12
4.1. Biofilm mintavétel a Gellért-táróban.....	12
4.1.1. A mintaelőkészítés és a minták bemutatása	13
4.2. Molnár János-barlang mintavétel, a terület bemutatása	14
4.2.1. A mintaelőkészítés és a minták bemutatása	16
5. A mérésekhez használt műszerek rövid ismertetése	19
5.1. Gamma-spektroszkópia	19
5.2. Folyadékszintillációs spektroszkópia.....	21
5.3. Radonexhaláció.....	22
6. Eredmények	24
6.1. Felderítő mérések eredményei.....	24
6.2. Mérési eredmények.....	27
6.2.1. Gamma-spektroszkópiás mérések eredményei	27
6.2.2. Méréstechnika: Hatásfok a magasság függvényében	31
6.2.3. Radonexhaláció mérése	33
7. Diskusszió	36
8. Köszönetnyilvánítás	40
9. Irodalomjegyzék.....	41

1. Célkitűzés

A Budai karszt termálforrásaiban Magyarország egyik legnagyobb vízben oldott radontartalma található. Ennek forrása az eddigi vizsgálatok szerint egy mikrobiális eredetű rádium feldúsulás, amely számos vizsgált megcsapolódásnál mérhető.

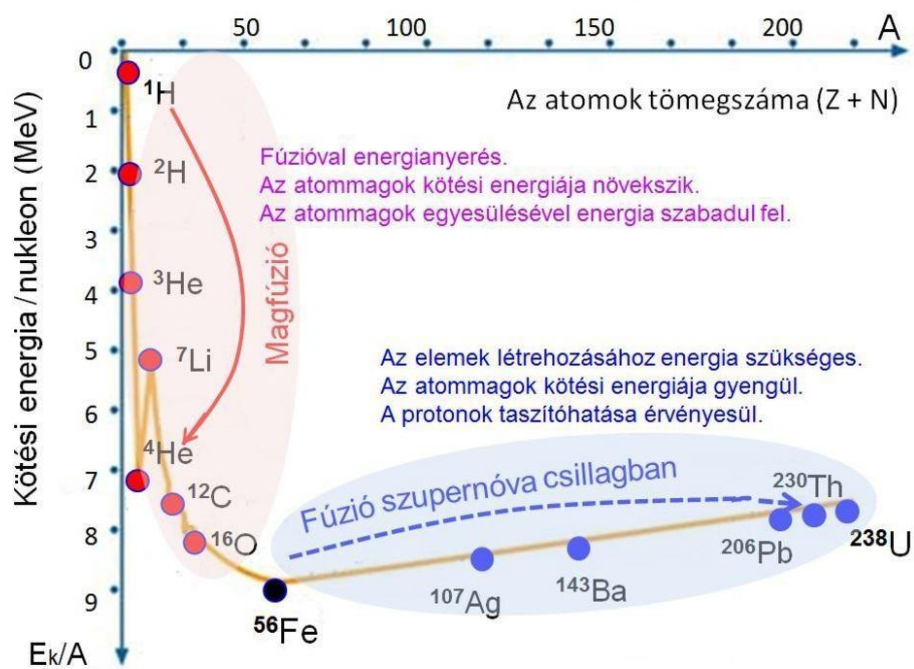
A kutatásom célja a Molnár János-barlang anyagában feltételezhetően megtalálható fenti típusú biofilm komplex feltérképezése. A barlangban kétfajta (vörös és fekete) biofilmek ismertek.

Arra a kérdésre keressük a választ, hogy milyen folyamat során történt a rádium kiválás, ennek milyen anyagi környezete van. Meghatározzuk a radonkibocsátási paramétereket, amivel a barlang vizének radonkoncentrációját kívánjuk megmagyarázni. Ezen vizsgálatok mellett néhány mérés technikai kérdésre is válaszokat keresünk.

2. Radioaktív elemek a környezetünkben

2.1. Bevezetés

Az univerzumban létrejött csillagrobbanások (pl. szupernova-robbanás) következtében a nagy tömegű csillagok maradványai a világegyetemben szóródtak szét. Ez csillagközi porként volt jelen, ami később összecsomósodott és hosszú idők alatt, bolygóképződési folyamatok során megszületett a Föld. A vasnál nehezebb (nagyobb rendszámú) elemek az univerzumból érkeztek, míg a könnyebb elemek a csillagok magjában lejátszódott fúziók során alakultak ki. Jól látható a mai bolygószerkezetben, hogy a vas és a nikkelt a Föld középpontjában, a magban centralizálódnak, és kifelé a kisebb, nagyobb rendszámú elemek kapnak helyet (1. ábra y-tengelye). Az elemek közül a vas és a nikkelt a legstabilabb, látható az alábbi ábrán is, hogy ezek rendelkeznek a legnagyobb kötési energia/nukleon fajlagos energiával, ezzel magyarázható az előző tény. (Rieth)



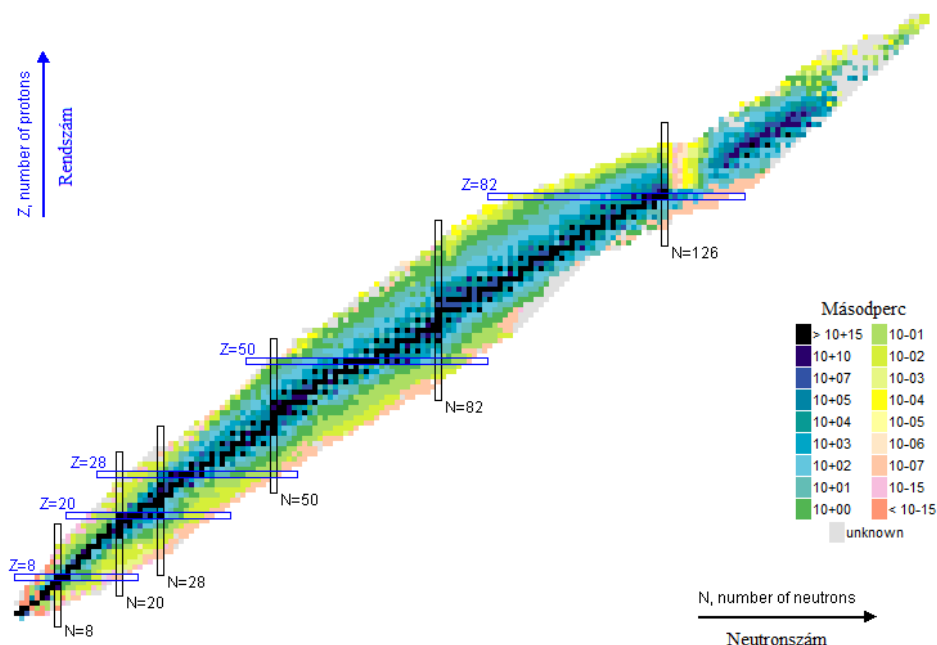
I. ábra: Az atomok keletkezése és fejlődése. (Forrás: <http://oktoport.hu/epített-kornyezetunk-termeszetes-radioaktivitasa>)

Az elemekről atomi szinten beszélhetünk, a protonok száma határozza meg a kémiai elem természetét. A neutronok számának erre semmi befolyása sincs. A protonokat, neutronokat mikrorészecskéknek, elektronokat elemi részecskéknek gondoljuk, amik az atommag, illetve atom alkotórészei. Az elektronok az elem reakcióképességében játszanak nagy szerepet. Még az atomoknál maradva, ha a protonszámuk azonos, de a neutronszámukban különböznek egymástól, izotópoknak nevezzük őket. Ilyenkor ugyanarról az elemről beszélünk, különbség közöttük a stabilitásukban van. Az izotópok lehetnek stabilak vagy instabilak, amik maguktól is képesek lehetnek bomlásra. Ennek a folyamatnak a célja, hogy energiaminimum felé törekedjenek a folyamatok. Az ilyen atomokat radioaktív izotópoknak nevezzük, ilyenkor a bomlás során egy más elem keletkezik. Majdnem minden kémiai elemnek több izotópja van, és a természetben előforduló legtöbb elem izotópok keveréke. Ezek lehetnek természetesek vagy mesterségesek. Utóbbi jelentősége talán az, hogy az anyagok izotópjai mesterségesen radioaktívvá tehetőek, így gyakorlati jelentőségre, lehetőségekre tesznek szert. A bomlások sorrendjéről a különböző bomlási sorok tájékoztatnak, ezekről a következő fejezetben esik szó részletesebben. (Dési, 1966)

A földfelszín alatt, a litoszférában elemek sokasága található. Vannak közöttük stabilak és radioaktívak is egyaránt. Ezek az atomok általában szabályos rácsokba rendeződve alkotnak egy „építőelemet”, melyeket ásványoknak nevezünk. Ezek többsége szabad szemmel is látható, természetes kristályos vegyületek. Az ásványok több osztályba sorolhatóak, anion-csoportjaik szerint. Ezek fölötti szint a kőzeteké, melyek ásványokból épülnek fel. A kőzetek szintén csoportosíthatóak, például keletkezési állapot alapján. Megkülönböztetünk magmás, üledékes és metamorf kőzeteket. A földfelszín alatt találhatóak vizek, szerves anyagok, levegős üregek is, de a litoszféra főként szeretlen vegyületekből, kőzetekből épül fel. Ezek tömegessége alkothat kőzettesteket, lemezeket, hegyeket, geológiai képződményeket, melyek már inkább kilométeres skálán vizsgálhatóak. A természetes radioaktív izotópok végigkísérték a földtörténeti múltban a geológia folyamatokat és területi eloszlásuk is az ilyen folyamatok eredménye.

2.2. Bomlási sorok

A bomlási sorok mindig egy nagy rendszámú elem hosszú felezési idejű izotópjának bomlásaival írhatók le, míg egy alacsonyabb rendszámú stabil atommá nem válik (általában ólomná).



2. ábra: Izotóptérkép. (Forrás: <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>)

A bomlás történhet alfa-részecske kiszakadásával, vagy béta-bomlással. Ilyenkor a rendszám és tömegszám változását követhetjük végig a sorok vizsgálatával. Az úgynevezett izotóptérképek (2. ábra) kiválóan mutatják be ezeket az állomásokat. Négy bomlási sor létezik az urán-238-as, az urán-235-ös, a thórium-232-es, és a neptúnium sorozat. Ezekből három ma is játszódik, ezek felezési ideje durván a föld korával esik egybe, a neptúniumé ennél kisebb, így az mára teljesen elbomlott. A radonnak 20 izotópja ismert, ebből a két legfontosabb a toron ($A=220$) és a radon ($A=222$), attól függően, hogy a tóriumtól vagy az urántól ($A=238$) származtatható. (Köteles, 1994) A kettőnek eltérő a felezési ideje. A különféle radioaktív izotópok eltérő sebességgel bomlanak, ezért szükséges a felezési idő fogalmának bevezetése. Ez az anyagra jellemző állandó megadja, hogy adott valószínűséggel mennyi idő alatt bomlik el az izotóp atommagok fele. A litoszféra közeiben ezek az izotópok is helyet kapnak, melyek bomlásukkal egyéb radioaktív elemek tömegeit hozzák létre a földkéreg és a köpeny ásványainak belsejében. Ásványi szinten helyettesítéssel is beépülhetnek a rácsba ezek a kationok, ha a feltételek adottak, pl. oxidációs szám egyezés, atommag méret egyezés. A Föld belsejében lezajló radioaktív reakciók szolgáltatnak a bolygó számára hőt, illetve ún. geotermikus energiát, aminek ma is nagy jelentősége van a jelenlegi klíma működésben. Másik fontosságaként megemlíthető, hogy megújuló energiának használható. (UNSCEAR, 2000)

A radioaktivitás természetes folyamat, a Földön általánosan jelen van (mindenkit körülvesz), félni nem érdemes tőle. A gond a többletdózissal lehet. (UNSCEAR, 2000)

2.3. Sugárvédelem

Az különböző radioaktív izotópok tehát bárhol előfordulhatnak, mint pl. a kálium 40-es izotópja, melynek gyakorisága az összes kálium atom 0,0117%-a. A ^{40}K nagyon gyakori, két közismert példája előfordulásának a banán és az étkezési célokra is használt kálisó. Mesterséges izotópok is megjelenhetnek természetesen, ilyen például a ^{137}Cs izotópja.

Ahhoz, hogy a különféle sugárzások kockázatáról, veszélyeiről lehessen tárgyalni be kell vezetni a dóziszfogalmakat, dózismennyiségeket. Az ionizáló sugárzások esetén a dózis az anyagban elnyelt energiaként értelmezhető. Ez a

fogalom tömegegységre vonatkoztatva megadja az elnyelt dózis képletét. (Tóth, 1983)

$$D = \frac{E_{leadott}}{m} = \frac{dW}{dm} = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{dW}{dV}$$

ahol dW az elnyelt energia, m az elnyelő anyag tömege, V a térfogata, ρ a sűrűsége. Ha kíváncsiak vagyunk az ionizáló sugárzás bonyolult biológiai hatásaira, komplikáltabb számolásra van szükségünk. A sugárzás és a besugárzott anyag kölcsönhatása először fizikai, majd kémiai és biológiai folyamatok egyvelegeként jelenik meg. Az egyenérték-dózis számolásához ki kell egészíteni a sugárzásra jellemző faktorról (pl. a béta-sugárzás súlyozása 1).

$$H_{T,R} = D_{T,R} \cdot w_R$$

ahol R a sugárzás fajtája, T a szövet vagy szerv, mint elnyelő anyag jelenik meg. A w a fent említett sugárzásra jellemző súlyozófaktor. Ha többféle sugárzás alkotja, melyeknek a súlyfaktorja is különböző akkor

$$H_T = \sum_R D_{T,R} \cdot w_R$$

a sugárzások szerint összegezni kell az értékeiket. A különféle szöveteknek is eltérő az érzékenysége. Ha az egyenérték-dózist megszorozzuk a szövet érzékenységre jellemző faktorról (w_T) és ezt az összes szövetre, illetve szervre összegezzük, akkor eljutunk az effektív dóziséig.

$$E = \sum_T w_T \cdot H_T$$

Ezekre már korlátok is bevezethetőek, melyek világszinten is összehasonlíthatók az effektív dózissal. Egy ilyen korlát pl. a 20 mSv/év, mely egy átlagos munkahelyi dózissal vonatkozik. Ez a dózis érheti egy pillanat alatt (utána azonban mellőzni kell minden forrást), vagy 1 év alatt folyamatosan. A természetes háttérsugárzás éves dózisa 2 mSv/év, 4 mSv sugárterhelés már a háttér duplájának felel meg. Sokféle korlát van, főként attól függően, hogy az ember milyen gyakorisággal van kitéve a sugárzásnak. (Köteles, 2002)

Ez a többletdózis nem csak azokat érinti, akik atomerőműben vagy laborokban dolgoznak. A történelemben érintette uránbányászokat, festőket, akiknek munkaeszközei rádiumot tartalmazott, felléphet földbe ágyazott helyiségek, pincék esetében, melyekben feldúsulhat a radon. Minden tevékenységnél kiszámítható a kockázat (rizikófaktor), amibe beleszámít az ilyen kitettség is. Ezek az értékek szintén összehasonlíthatóak (pl. Társadalmilag Átlagos Munkahelyi Kockázat). (Tóth, 1983)

2.4. A radon és a rádium mozgása a természetben

A rádium forrásai a felszín alatti kőzetek ásványai. A vizekbe (csapadékba, felszíni vizekbe, felszín alatt vizekbe) hidrogeológiai áramlások segítségével juthat be. Megállapíthatjuk, hogy a Föld szilárd felszínének van természetes radon-exhalációja. Ez a felszín lehet talaj, folyómeder, tengerfenék. A talajban bomló rádium leányeleme a nemesgáz szerkezetű radon, ami például diffúzióval juthat a felszínre, ám ez egy nagyon lassú folyamat.

A másik lehetőség, hogy a levegővel együtt szállítódik (mintha a kipárologna a levegőbe), ilyenkor lényeges a levegő permeabilitása. Az emanáció értéke megadja, hogy mennyi radonatom lép át a pórustérbe időegység alatt. Az exhaláció ettől különbözik, a szabad légtérbe jutó atomokat jelenti. A gyakorlatban ezeket a paramétereket mérve kvantitatív meghatározhatjuk a radonkibocsátás mennyiségi adatait is. A felszálló levegő a radonnal átlépi a földfelszínt, ami napközben a napsütés hatására melegszik, a levegő sűrűsége csökken. Éjszaka megfelelő feltételek esetén ez az alsó réteg lehül és hőmérsékleti inverzió keletkezik, azaz a hőmérséklet nő a földfelszíntől távolodva. Ha nincs inverzió, akkor a radon a tropopauzában (kb. 10 km magasan) a turbulens áramlások hatására elkeveredik. A felhőképződés folyamata során a levegőben lévő aeroszolszemcsékre, felhőkondenzációs magokra, vízmolekulákra ráragadhatnak a radon leányelemei. Ezek a reakciók azonban a radont nem érintik, mert azok szabályossága (nemesgáz szerkezet) miatt lepattannak a szemcsékről, ellenben leányelemeik rátapadhatnak (pl. polónium). A vízmolekulák is ráragadnak az aeroszolra, melyek addig híznak, míg esőként le nem hullajtják a gyűjtött, kondenzálódott vizet. Fontos tehát, hogy a radon a leányelemeivel az aeroszolon keresztül juttatja le a földre az aktivitását.

Ezek a háttérben akár járulékként meg is jelenhetnek. Az esőnek így lehet radioaktivitása, de radontartalma nem. (Sas és mtsi, 2015)

Az urán geológiai folyamatok során az ásványok rácsaiba beleépült. Az itt található atomok sokszor helyettesíthetőek U kationnal pl. a monacit esetében, ahol a CePO_4 rácsban a $2 \text{Ce} \rightarrow \text{U} + \text{Ca}$ a hasonló paraméterek miatt kicserélődhetnek. Bomlásakor az alfa- és béta-bomlások utakat törve a rácsban, deformációt, diszlokációt, rácsroncsolódást okozhatnak. Ezek következményeként diffúzióval a nemesgáz szerkezetű radon kijuthat a szemcséből és a pórustérbe lépve nagyobb mozgástérre tesz szert (ez az emanáció). A talajszemcsék ásványaiban található rádium tehát több módon beépülhet. (ELTE jegyzet)

- Lehet „beleszületett”, vagyis egy uránatom, rádiumatom része az ásványnak és ennek bomlásával rádium születik.
- Másik lehetőség, hogy a rádium az ásvány keletkezésekor része.
- Harmadik eset, hogy a rádium egy szemcse felületén válik ki és egy kémiai reakció eredménye.

Ezek után a már említett exhaláció történik, ami a makroszkopikus minta szemcséből és a szemcseközi térből a levegőbe jutó időegység alatt kilépő atomok számát jelenti.

A diffúzió történhet vízben vagy levegőben koncentrációkülönbség hatására. A diffúzió mellett mozoghat konvekcióval is, ami nyomáskülönbség, vagy hőmérsékletkülönbség hatására alakulhat ki. A különböző molekuláknak, aeroszoloknak ütközve hozzátapadhatnak a radon leányelemei, az elektronszerkezetek miatt. Ez történik a pincékben is, ahol a falhoz tapadhatnak, vagy a korábban említett vízcseppekhez. Egészségügyi hatásként meg kell említeni, hogy még radon állapotban lejuthat a tüdőbe a levegővel, mint radioaktív gázkeverék és ott elbomolva a leányelemei hosszabb ideig is ott tartózkodhatnak (és bomlásaikkal kárt okoznak a szöveteknek). Másik eset az, amikor az aeroszolszemcsékhez tapadt leányelemek eljutnak a tüdőig és ott a méretük miatt nem tudják bevenni a hörgőcskék finom kanyarjait és kirakódnak. Ez a folyamat, mint szűrőhatás meggátolja azok távozását a szervből, illetve továbbjutását és ott radioaktív izotópok lévén alfa-bomlásokkal besugározzák a környezetüket. Ez mindenképp problémának tekinthető a sugárvédelemben, hisz alapvető kijelentés, hogy nagy mennyiségű sugárforrás ne jusson a szervezetbe, mert ott közvetlenül

érheti a szerveket. Külső hatásként kevésbé probléma, mert az alfa-részecske a bőrben elnyelődik, ezért sugárdózist nem ad. (Palotai, 2005)

Felszín alatti vizekbe is bekerülhetnek a leányelemek, bomlástermékek, így a vizeknek is lehet radioaktivitása. Ezeket használják ki a gyógyfürdők egy része is, mert állítólag a radioaktivitás kis mértékben gyógyító hatású lehet. Ismert a radioaktív izotópok nyomjelző hatása is, amit az orvostudomány ki is használ.

3. Budai Karszt bemutatása és a biofilmek rádiumtartalma

A karsztokat a beszivárgó csapadékok alakítják, melyek a levegőben, illetve a talajban található szén-dioxidot felvéve, szénsavként reakcióba lépnek a karbonátos kőzetekkel. Így jönnek létre az epigén karsztok. A felszín alatt áramolva a víz szintén gázokat (CO_2 , H_2S) vehet fel vagy más vizekkel keveredve fejtheti ki oldó hatását. Ezeket hipogén jelzővel illetik, azaz eredetük nem a felszín, hanem mélységi.

Budapest gazdag a termálvizekben, több fürdő intézmény is rátelepült ezekre a forrásokra. Ezek a vizek alakították a barlangokat és ásványokat, amik különféle hőmérsékletűek és oldottanyag-tartalmúak lehetnek. A barlangképző folyamatok folyamatosan, ma is zajlanak. A Molnár János-barlang erre jó példa, a karsztvíz szintjén helyezkedik el. A Rózsadomb és a Gellért-hegy térségének alakulásában fő különbség, hogy előbbi langyos ($20\text{ }^\circ\text{C}$) és meleg ($60\text{ }^\circ\text{C}$) termálvizek keveredéséből, (keveredési korrózió) a Gellért-hegy alatti rendszert meleg vizek ($40\text{ }^\circ\text{C}$), eltérő oldottanyag-tartalommal, azaz eltérő folyamattal hozták létre. Utóbbi egy külön alrendszernek tekinthető a Budai-termálkarszton belül.

A jelenleg is tartó kutatások egyik kérdése, hogy milyen komoly szerepet játszhatnak az oldásban a mikrobák és a szállított kén-hidrogén. (Eröss, Mádlné Szőnyi és mtsi, 2012)

A biofilmek élő és elpusztult szervezetek, valamint anyagcseretermékeik csoportosulását jelenti, melyek megtelepednek valamilyen határfelületen, esetünkben pl. a barlang falán. Feltételezések szerint felületükön az extracelluláris polimer mátrixban képesek a rádium szállítására, ezzel többletként hozzájárulva a víz alapvető radontartalmához. (Csondor, 2016)

4. Mintavételezési eljárások

4.1. Biofilm mintavétel a Gellért-táróban

A Gellért-hegy főként felső triász korabeli dolomitból áll, ami márga, agyagmárga rétegekkel bővül, továbbá a rétegsorban betelepülésként tűzköves mészkő is megfigyelhető. A kalcit és aragonit: kalcium-karbonát ásványok, különbség a kettő között a kristályszerkezetben van. A dolomit szerkezeti neve kalcium-magnézium-karbonát. Attól függően, hogy a kőzet milyen ásványból épül fel beszélhetünk mészkőről (karbonátos kőzet) vagy márgáról (agyagtartalmú, így átmeneti karbonátos kőzet), melyeket döntően kalcit vagy aragonit alkot. (Korpás, 2002)

A mintavétel 2016. október 14-én történt a Gellért-fürdő alatti alagúrendszerben. A levegő hőmérséklete kb. 30-40 °C és páratartalma relatíve nagy, mert termálvíz folyik a barlang falai között. Több állomás található, ahol a víz szivattyúzása történik. Az alagút közepén komplex, sokrétű földtani, biológiai, kémiai, fizikai vizsgálatok folytak, melyeket egy Mádlné Szőnyi Judit által vezetett szakértő csoport végzett. Ők a Gellért-táró XI-es kútjából és a hozzá közeli aknából egy kisebb méretű búvárszivattyú segítségével vizet folyattak az alagút hosszában egy kb. 25 cm-es, húrtrapéz alakú mesterségesen kialakított és megtisztított mederbe. A folyást a szivattyúzási ponttól 120 méterig vizsgálták különböző paraméterekre.

A kutatás vezetőjétől engedélyt kaptam a korábban vízzel teli, de már kiszáradt mederszakaszból száraz biofilm mintavételére. A szivattyúzási ponttól, a folyási medertől ellentétesen 39 méterre kb. 35 cm³-nyi mintát vettem kézzel, a témavezetőm segítségével. A küvetta térfogatát kitöltötte a szálás, vas-mangan-oxihidroxidos (Csondor, 2016) biofilm minta, színültig volt préselve. A biofilmszálak mellett kalcit ásványokkal is találkoztam, melyek akár aragonit kiválások is lehetnek. Az ásvány tömeges megjelenésű volt, kristályszerkezetét a helyszínen nem tudtam megállapítani (vöröses bevonat borította a medret). A feltételezhetően kalcit termálvízből válhatott ki. Főbb célom a mintával, hogy elvégezzem az aktivitásának számolását. A gamma-spektroszkópiával nyert spektrumból megtudhatjuk, hogy rádiumot tartalmaz-e ez a minta, azaz a forrásban, forrásmederben található biofilmek felületén vagy belsejében kötődhet-e a rádium.

4.1.1. A mintaelőkészítés és a minták bemutatása

Először a küvetta paramétereinek becslését végeztem el, mert a későbbi hatásfokszámításhoz, illetve az azutáni aktivitászámításhoz nélkülözhetetlen adatok. Kétféle küvettaival találkoztam az egyik műanyag, matt fehér színű, kb. 9,3 g, a másik áttetsző, üveg küvetta kb. 15,6 g tömegű. A méréseket üveg küvettaival végeztem, paramétereit az alábbi táblázatban látható, a műanyagot a maradék minta tárolására használtam.

Küvetta paramétereit	Értékek centiméterben [cm]
Magassága	2,15
Üveg vastagsága	0,05
Külső átmérő	2,74

1. táblázat: Az üveg küvetta tolómérővel számított paramétereit.

A gyűjtött minta eredeti magassága a műanyag küvettaiban 4,5 cm. Ezután a mintát szemmel mérve megfelezttem, 2,15 cm magasságú lett, amit késsel durván felaprítottam.



4. ábra: A már megfeleztett biofilm minta. A képen látható miért szálas megjelenésű, leginkább a szárított, aprított dohányra hasonlít.

A minta tömege 2,7202 g. A négy tizedes jegy pontosság az analitikai mérlegnek köszönhető. Az így készült GTBP1A mintán 1 napos, illetve 4 napos mérést végeztem a gamma-spektroszkóppal, úgy, hogy a kupak a küvettán volt. Ezután a mintát mozsárral finom szemcsésre aprítottam és ismét megmértem 1 napos mérésidővel először 2016. december 14-én kupak nélkül és december 20-án kupakkal is (felhelyezésének időpontja 17:10). A morzsolt minta tömege 2,6801g. A kupak szerepének fontosságára kívánok választ találni az előbb említett mérés technikai bizonyítással.

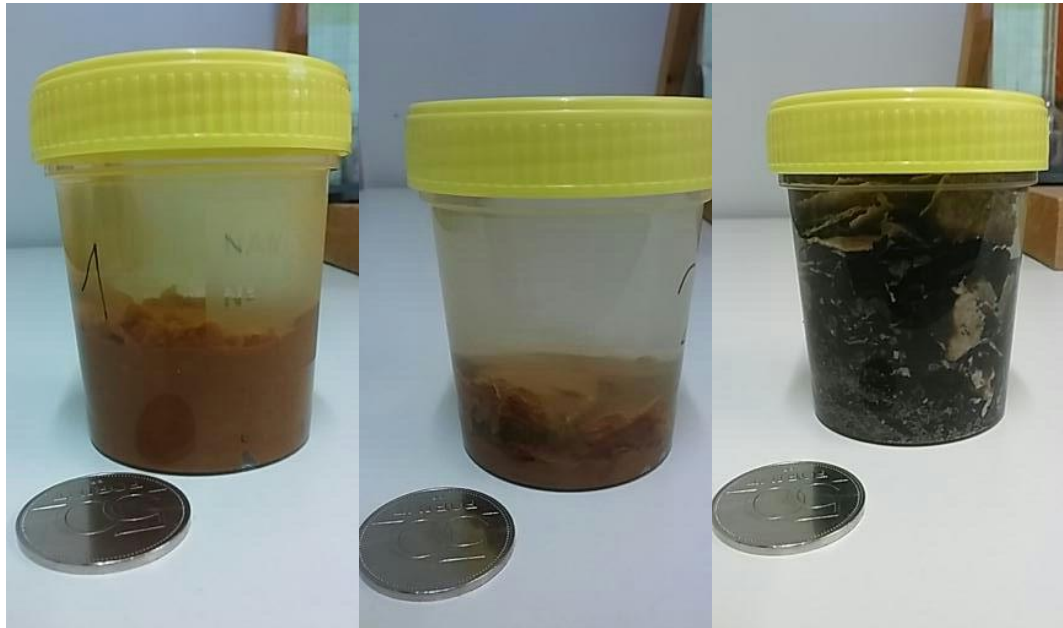
Felmerülhet továbbá az a kérdés, hogy érdemes-e külön tárazni a küvettákat, vagy egyszer elég lemérni a mintatartó tömegét és mindig kivonni a teljes minta tömegéből. Két eltérő üveget megmérve kiderül, hogy a közöttük lévő eltérés kb. 0,7 g, ami az üvegyártás folyamatát végig gondolva egy érthető és elfogadható dolog. A minta tömege néhol ennél lényegesen kisebb érték lehet (pl. 0,19 g), a szeparálás nehézségétől függően. Ebből kiderül, hogy az üveg tömegének bizonytalansága meghaladhatja a minta tömegét is, ezért lényeges pontosság a küvetták külön mérése.

A P13-as mérőszobában, az ólomtoronyban, valamint a HPGe-detektor közelében is fennáll a radon leányelemeinek gamma-sugárzása, ezektől teljesen megszabadulni nem lehet. A laborban folyamatos az elszívás, és sok munkába került a relatíve alacsony háttérsugárzás biztosítása.

4.2. Molnár János-barlang mintavétel, a terület bemutatása

A barlang fő tömegét alsó-oligocén korú budai márga és felső-eocén korú szépvölgyi mészkő alkotja. A víz alatti barlang kivilágított járatai régóta látogatottak különböző bújárcsapatok által. Budapest szívében, a Rózsadomb környékén található (korábban Felhévíznek nevezett) terület, ami termálkarsztos barlangokban igen gazdag. A budai barlangrendszereket termálkarsztos tevékenységek hozták létre, a mélyből feltörő karsztos hévizek vájták. (Karádi, 2016) Egy mintegy 150 méter hosszú táró vezet a több mint 8 km hosszú járatrendszerbe. A barlang vége még nem ismert, az eddig feltárt terület a 1970-es évektől folyamatosan bővül, ami tájékozódást segítő köteleket követve bejárható, gyakorlatilag bújárcsapatok, bújárturizmus szolgáltatás céljából is igénybe vehető. A barlang változásokon ment keresztül a felfedezése óta (kb. 30 éve védett terület),

és folyamatos felújításokkal igyekeznek megkönnyíteni a barlang vizsgálhatóságát, ugyanis egy világszínvonalú természeti képződményről van szó. Dr. Szieberth Dénes (egyetemi docens, a BME Vegyészmérnöki és Biomérnöki Kar tanára, technikai bűvár és barlangkutató) többször hajtott végre mintavétel céljából is merüléseket. A 2016. októberi merülése során gyűjtött néhány minta közül kaptam tőle hat eltérőt, háromféle teremből.



5-6-7. ábra: A három bevonatminta.

A mintavételek célpontja egyrésztől barlangi fal anyaga (F), valamint a rajta található bevonat (B). Az alábbi táblázatban látható a hat minta és a helyszín a barlangon belül, ahol begyűjtésre kerültek. Ezek a minták szárítás után szeparáláson estek át szín szerint, melyről a következő fejezetben esik szó.

MAB1	A32A9, A pont, 31 méter
MAB2	Világító torony elkerülő, V pont
MAB3	B4, B pont, 33 méter
MAF1	A32A9, 31 méter
MAF2	Világító torony elkerülő
MAF3	B4, 33 méter

2. táblázat: A Molnár János-barlangból származó minták gyűjtési helyszínei.

4.2.1. A mintaelőkészítés és a minták bemutatása

A mintákat 2016. november 10-e környékén kaptam. Kezdeti nevük $MJBP_{x_i y_i}$ volt, x_i : a minták sorrendje; három bevonat és három „hordozó” fal anyag, y_i pedig a mintára írt számot jelezte. Alaposabb szemügyre vétel után kapták a logikusabb, egyszerűbb nevet. A származási felületről következtetve MAB_{x_i} és MAF_{x_i} neveket kapták, ahol az $x_i = 1, 2, 3$. A mintákat víz alatt vették, azaz légmentesen lezárva, színültig töltve voltak vízzel.

Eredeti állapotú minták

Feltérképezés céljából 1 órás mérésidővel lemértem a 6 mintát eredeti állapotban is.



8. ábra: A bevonat- és falminták. Látható, hogy a MAB minták heterogének, a MAF minták homogének. A középen látható MAB1 mintatartóából történt a kaparási vizsgálat.

Ezek után a folyadékszcintillációs méréshez 10 ml szcintillációs koktélt mértem be 23 ml-es küvettákba, majd a minták tetejéről 10 ml vizet mértem bele fecskendővel. A mintatartó poharakat 2016.11.30-án nyitottuk ki először és a nyitás után 30 másodperc elteltén belül bele is került a küvettákba a vízminta. A vízminta aktivitása folyamatosan csökken, az anyaelem hiányában nem tud pótlódni a radon. A vízmintából azonban diffúzióval el kell jutnia a koktélba, így néhány nap után,

2016.12.03-án megtörtént a minták lecsapolt vizének mérése is. A mért eredményeket a 6. táblázat tartalmazza.

Kiszáritott minták

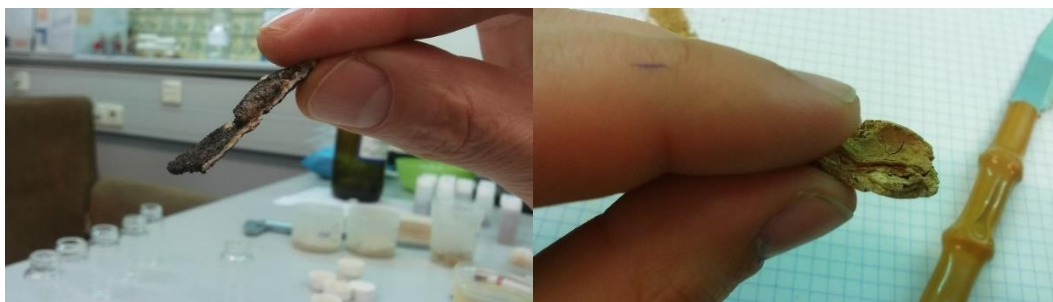
A minták lecsapolása után néhány napig hagytam kiszáradni a mintákat. Két mintatartó pohár tömegének vizsgálata során megállapítható, hogy a poharak tömege állandónak becsülhető. A két tömeg 8,0015 g és 7,9917 g, ami persze függ attól, hogy mennyi minta marad a pohárban. Ezt igyekeztem a minimumra redukálni. Ezen a vonalon mégis továbbindulva, az egyik poharat jobban megvizsgáltam. Az első mintakivétel után tömege 8,0110 g, majd a második kaparás után 8,0015 g, tehát kb. 0,0095 g anyagot távolítottunk el egy alaposabb „tisztogatás” során. További kaparással talán még ugyanannyi minta lenne a mintatartóban. Az így meghatározható szisztematikus hiba körülbelül 0,01 g. A minták tömegmérése során az alábbi táblázatot kaptam.

MAB1	8,077 g	MAF1	49,8135 g
MAB2	2,831 g	MAF2	20,2994 g
MAB3	87,8608 g	MAF3	15,7697 g

3. táblázat: A Molnár János-barlang minták tömegmérése.

A minták anyagainak szeparálása

A heterogén mintákat színek szerint szétválogattam. Ezzel célom az volt, hogy a különféle fázisokat függetlenül mérve megállapítsam, hogy a mintán belül fajlagosan melyiknek nagyobb a radioaktivitása, azaz melyik járul jobban hozzá a beütések számához. A szeparálások nem sikerültek feltétlenül tökéletesen, de arányait tekintve nagy különbségeket mértünk a szétválasztott fázisokban.



9-10. ábra: Balra a heterogénnek tekinthető MAF3 minta egy darabja látható. A belső fehér anyagra egy fekete bevonat telepedett. Jobb oldali képen pedig a könnyű aprózódása miatt nehezen szétválogatható réteges MAF2 minta található.

Ezek után 1 napos mérésidővel gamma-spektroszkópiai méréseket végeztünk az összes mintán kupakkal és kupak nélkül is.



11. ábra: A szeparálások után a gamma-spektroszkópiára előkészített minták.

A radonexhalációs mérések előkészítése

A mérések után újabb mintaelőkészítés történt exhaláció mérésére a TriCarb 1000-es műszerrel. Műanyag küvetákba kb. 1 g anyagot mértem mindegyik korábban előkészített küvetából. Ezeknek a tömegét gondosan lemérve, fecskendővel 9 ml ioncserélt vizet adagoltam a mintákhoz. Az egyik mintát kiválasztva (MAB1M, mix), külön 1 g és kétszer 2 g mintát készítettem. Lényeges különbség, hogy az egyik 2 grammos minta mellé csak 5 ml ioncserélt vizet adtam,

hogy megtudjam milyen változást okoz a mért eredményekben. Végző lépésben 10 ml Opti-Fluor O szcintillációs koktéllal töltöttem fel. Ennek a folyadéknak az a jelentősége, hogy eltérő sűrűségű a víztől (azaz külön 2 fázist alkotnak, az ionizált víz fölött helyezkedik el) és a vízmintából átdiffundál a radon. A 5.2-es fejezetben részletesebben foglalkozom a témával.



12. ábra: Az exhalációs mérésre előkészített minták, szcintillációs koktél nélkül.

5. A mérésekhez használt műszerek rövid ismertetése

5.1. Gamma-spektroszkópia

Általában egy természetes eredetű minta urántartalmát határozzuk meg a módszerrel, de gyakorlatilag bármilyen anyag aktivitása vizsgálható. A gyors mérésekkel a földkéregben tömegesen megtalálható urán-238 és leányelemei gamma-sugárzásának detektálására lehet számítani, a 0,7%-ban jelenlévő U^{235} , valamint a Th^{232} méréséhez több órás mérésidőre van szükség. A műszer lelke egy érzékeny HPGe (nagy tisztaságú germánium) félvezető detektor, amivel a minták gamma spektruma rögzíthető.



13-14. ábra: Balra látható az ólmotorony, jobbra pedig a HPGe detektor, aminek a közepére helyeztük a mintát.

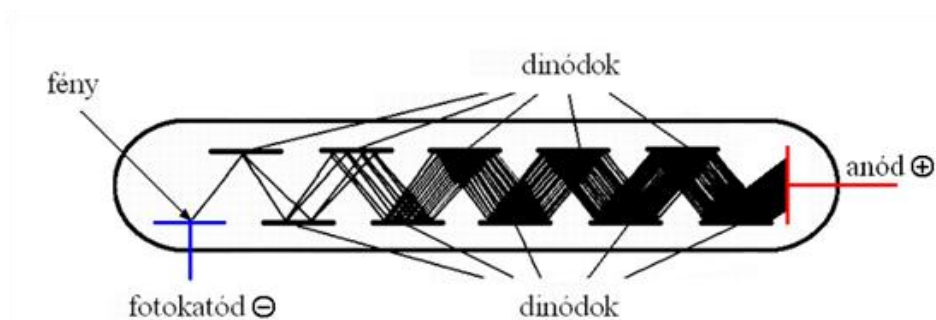
A mérendő részecske (gamma-kvantum) és a detektor anyagának kölcsönhatása szabja meg a leadott energiát. Ez a kölcsönhatás háromféle lehet: fotoeffektus, Compton-szórás és párkeltés. A fotoeffektus során a foton teljes energiája az anyag elektronjának adódik át. Ilyenkor az atom ionizálódik és az elektron nagy sebességgel halad az anyagban. Azonban gyorsan fékeződik, energiáját elveszti, mivel elektromosan nem semleges, így a környező elektronokkal kölcsönhatásba lép. A Compton-szórás esetében kölcsönhatásba kerülve egy elektronnal, a fotoeffektushoz hasonlóan az elektront szintén útjára indítja, azonban nem adódik át a foton teljes energiája, ezért képes több elektronnal is ütközni. A jelenség fotoeffektussal zárul, miután a részecskék energiájukat elveszítették. A párkeltés akkor jöhet létre, ha a foton energiája nagyobb, mint egy elektron és egy pozitron össztömege, azaz több mint 1022 keV. Ilyenkor a foton képes kipolarizálni egy elektront (mely eredetileg nem kapott helyet az anyagban) és egy pozitront a vákuumból. E két részecske folyamatosan lassul az anyagban, majd a pozitron annihilálódik egy elektronnal és két 511 keV energiájú foton keletkezik (ezek az ütközés miatt ellentétes irányban folytatják mozgásukat). Ez az energia már nem elegendő újabb párkeltéshez (mert kevesebb, mint 1022 keV), azonban a folyamat folytatódhat Compton-szórással, illetve fotoeffektussal. Tehát a bomlások során létrejövő gamma-foton teljes energiáját átadhatja a fent említett három folyamat valamelyikével, és a végén egy vagy két, elemi töltésű részecske keletkezik. (Grosev és Dódizs, 1958, 2006, Egyetemi jegyzet)

A detektorban keletkező elektromos jel arányos a kibocsátott foton energiájával, amit az amplitudo-analizátor feldolgozik és besorolja a 2^{13} , azaz 8192 csatorna valamelyikébe. Ez lesz a beütések száma az egyes csatornáknál. Ezeket aztán szükséges kalibrálni, az x tengelyen lévő csatornaszám helyett az energiákat

szeretnénk ábrázolni. Ebben segítségünkre lehet néhány kitüntetett csúcs, például a K^{40} 1460 keV energiájú csúcsa, amit a műszerrel egyszerű konyhasót mérve könnyen megkaphatunk. Néhány hasonlóan pontos csúcsot meghatározva, a mérőprogram által végzett kalibráció után megkapjuk a pontos csatorna-energia egyenletet, amivel az x tengely pontosan (energia szerint) a helyére kerül.

5.2. Folyadékszintillációs spektroszkópia

Az eljárás kedvelt tulajdonsága, hogy trícium, radiokarbon, valamint kis energiájú β -bomló izotópok mérésére is alkalmas. További β -bomlások és α -bomlások detektálására használható. Az alfa-bomlások levegőben csak kis távolságokat képesek megtenni. A folyadékszintillációs spektroszkópia erőssége, hogy a folyadékban nagyobb valószínűséggel találkoznak az alfa-részecskék oldószermolekulákkal (mint a levegőben mással), és az így keletkező fotonok már könnyedén eljuthatnak a fotoelektron-sokszorozóig, majd az amplitúdó-analizátor után a jelfeldolgozó egységig. A 10 ml folyadékmintákhoz 10-10 ml folyadékszintillációs koktélt (esetünkben OptiFluor O) kell adni. A két folyadék nem elegyedik. Néhány nap elteltével a folyadékmintából átdiffundál a radon a szintillációs koktéltba, ahol bomlásakor kibocsátott részecskék fényfelvillanást okoznak. Ezek a fotonok (mint leadott energia) átjutva a fotoelektron-sokszorozó fotokatódján, elektront szakítanak ki belőle.



15. ábra: A fotoelektron-sokszorozó vázlatos felépítése. A képen jól érzékelhető az erősítés mértéke, ha megfigyeljük a folyamatos vonalvastagodást, egybeolvadást. (Forrás:

<http://www.tankonyvtar.hu/hu/tartalom/tkt/atomabszorpcios/ch04s02.html>)

Az így keletkezett elektron 8-24 dinódán ütközve folyamatosan elektronokat hoz létre, a végére elérve az egymilliós nagyságrendet, amivel tehát a beérkező energiát elektromos jellé alakítja és felerősíti a jelfeldolgozó egység észleléséhez. Minél több dinóda található a fotoelektron-sokszorozóban, annál nagyobb lesz az erősítés, azonban annál később ér el az anódhoz. (Richter, 1958, Egyetemi jegyzet)



16. ábra: A mérésekhez használt Tri-Carb 1000 TR mérőműszer.

5.3. Radonexhaláció

A mérés során célunk, hogy meghatározzuk hány radonatom lép ki a mintából másodpercenként. Ez eltérő a víz radontartalmának mérésétől, hiszen a kőzetminta is jelen van a küvettában, így folyamatosan „párolog belőle” a radon. A földkéregben található urán- és rádiumtartalom meghatározza mennyi radon keletkezik, a szemcséken belüli diffúzió pedig azt, hogy mennyi juthat ki a kőzetből. Az exhaláció és emanáció fogalmát már korábban ismerttettem, ennél a mérésnél kiemelt jelentőséggel bír a két jelenség. A mérés elve, hogy a radon a minta fölötti szcintillációs koktéllba, és a felette lévő levegőbe áramlik, közben ezzel ekvivalens atom bomlik el (radioaktív egyensúly áll be, ha elegendő időt várunk).

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N + E$$

azaz N radonatom jellemzi a küvétét, ezek időben úgy változnak, hogy a bomlással $-\lambda N$ tényezőnyit csökken, E exhalációval gyarapodik.

Az egyenlet megoldása, vagyis a fázisokban lévő atomok száma:

$$N_l(t) = \frac{E}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t})$$

Az aktivitás:

$$A_{Rn} = E(1 - e^{-\lambda t}) = c_m \cdot 9 \text{ ml}$$

A felezési idővel számolva tehát kb. 4 nap elteltével kellően dúsul a szcintillációs koktéltban a radon, mert sokkal jobban oldja a gázt a víznél. A fent ábrázolt különbségek miatt a víz radontartalmának számolását módosítani kell, hogy a kiértékelés az exhalációt is figyelembe vegye:

$$E = \frac{c_m \cdot 10^{-2} l}{(1 - e^{-\lambda t})}$$

Méréseink során egy hét, azaz két felezési idő elteltével feltételezzük az exhalációs egyensúly beálltát. Ilyenkor az $e^{-\lambda t}$ tag elhanyagolható az 1-hez képest, ezért helytálló a korábban feltett egyenlőség:

$$A_{Rn} = E$$

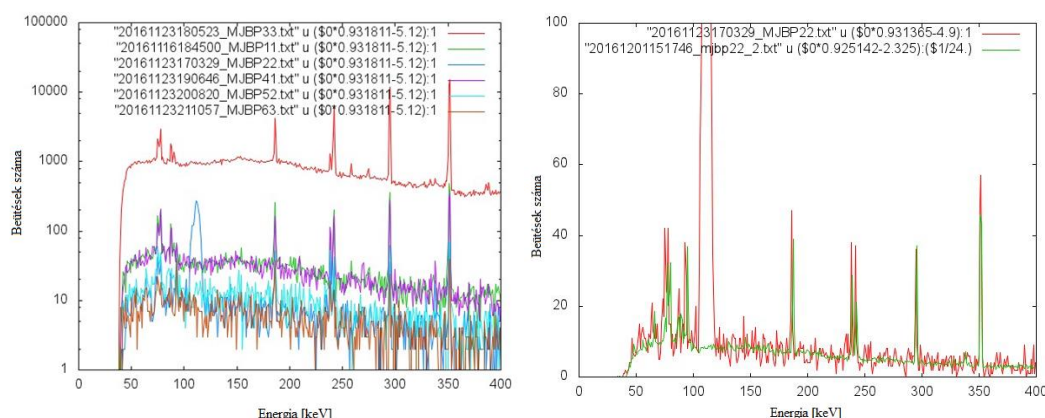
Arra számítunk az eredményeinknél is, hogy ez nagyjából teljesülni fog, vagyis az aktivitás értékei nem haladják meg az exhaláció mértékét.

A decemberi mérés során az eredeti minták vizét csapoltuk le és mértük a radontartalmát, eredményei aktivitáskoncentrációként (Bq/l) értelmezhetőek. Májusban exhalációs vizsgálatok történtek, aminek a végén fajlagos exhaláció meghatározása a cél. (Knoll, 2012, Egyetemi jegyzet)

6. Eredmények

6.1. Felderítő mérések eredményei

A mintaelőkészítés leírása során már említettem, hogy a Molnár János-barlangból származó mintákat egy órás feltérképező mérésnek vettem alá. Ez alapján kiderült, hogy a hármás bevonatminta komolyabb beütésértékeket produkált. Az alábbi ábrán látható mind a hat minta beütései egyszerre ábrázolva. A bal oldali ábrán az y-tengely logaritmikusan ábrázolja a beütések számát.



17-18. ábra: Balra összefoglaló spektrum a 2016. november 23-ai 1 órás időtartamú Molnár János-barlangból származó minták méréséről. Jobbra a MAB2 minta korábbi és ellenőrző újramérésének együttes spektruma. Látható, hogy valami megzavarta a műszert.

A 17-es és 18-as ábrán látható mintanevek a kezdeti elnevezésükként szerepelnek (ezeket a 16. oldalon részleteztem). A MAB2-es minta (kezdeti neve MJBP22) spektrumában szokatlan széles csúcs látható, ezért ezt később újramértük. Az újabb mérés során a széles csúcs eltűnt. Elektronikai zajnak azonosítjuk, ami véletlenül fellépett az első méréskor. A spektrumok többi része azonosnak látszik. Látható a Compton-háttér kisimulása is.

A 351 keV-es csúcs magasságához igazodnak az y-tengely maximumai 1 óra mérési időre vonatkoztatva. Ez utóbbiakat könnyű leolvasni, nem kell hozzá analitikus kiértékelés. Ezen kívül a 186 keV-es csúcs relatív arányát is le lehet olvasni a spektrumokból, szemrevételezéssel. Értéke: $\text{magasság}(186)/\text{magasság}(351)$.

Minta	MAB1	MAB2	MAB3	MAF1	MAF2	MAF3
351 max	500	60	16000	350	80	40
186 relatív	1/2	3/4	1/4	1/2	0,7	1

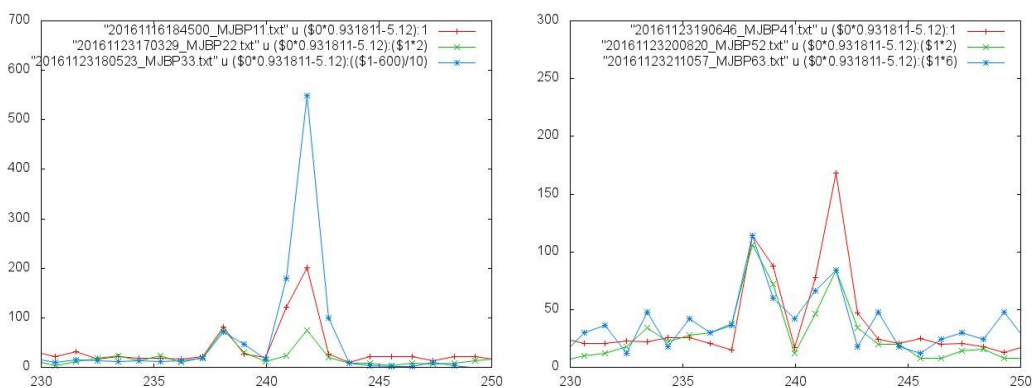
4. táblázat: Előzetes gamma-sp. mérés eredményei.

Az MAB3 bevonat beütési intenzitása 30-szor nagyobb a többiekénél. A tömege is nagyobb, de nem 30-szor.

A „186 relatív” érték a rádium és a radon leányelemek relatív viszonyát írja le. Ha ez kicsi, akkor a radon nem tudott kilépni a mintából a mérés körülményei között, és még ott elbomlott (a szemcsékben, a vízben vagy a levegő buborékban) és a leányelemei bomlását is erősen lehet detektálni (nevező nagy). Ha ez nagy, akkor a radon el tudott távozni és kidiffundált a mintából, eltávozott a mérési helyszínről, még az ólomtorony levegőjéből is. De legalábbis sokkal messzebbre került a detektortól, és így a mérés határfoka lecsökkent. Ez a csökkenés a 241-295-351-609 keV értékeknél másképp történik. Mindenképpen kevesebb 351 keV-es fotont detektáltunk, mint a radon-leányelemei egyensúly esetén lehetne, és a nevező lecsökkent.

A 238 és 242 keV-es csúcsok szemmel is jól összehasonlíthatóak. A 238 keV a tórium sor ^{212}Pb izotópjának 238,625 keV-es bomlása során (43,4%-os intenzitással) keletkezik aktivitására jellemző, a másik az urán sor ^{214}Pb izotópjának 241,91 keV-es bomlásakor (7,45 %-os intenzitással). A két különböző energiájú foton detektálási valószínűsége viszont nagyon jól megegyezik. A spektrumokon a 238 keV-es csúcsok magasságát összenormáltuk, az y-tengelyre érvényes szorzó faktorok az ábrákon megtalálhatók.

Mindkét csúcs a radon, ill. toron utáni izotóp bomlásához tartozik, ezért a radonexhaláció, ill. toronexhaláció hatása ezen arányokban benne van. A toronexhaláció mindig kisebb amiatt, hogy a toron 55 másodperces felezési ideje jóval kisebb a radon 3,8 napos felezési idejénél.



19-20. ábra: A 238-242 keV-es csúcsok összehasonlítása. Bal oldalon a bevonat minták, jobb oldalon a fal anyagának mintái láthatók. A spektrumok függőlegesen be vannak skálázva úgy, hogy a 238 keV-es csúcsok magassága azonos legyen.

Minta	MAB1	MAB2	MAB3	MAF1	MAF2	MAF3
242/238	4	1	10	1,6	0,8	0,8

5. táblázat: A 238 és 242 keV-es csúcsok összehasonlítása.

A „fal” típusú mintákra ez az arány 1 körül van, és minden bevonat típusú mintára nő. Azaz radonexhalációval együtt is magasabb rádiumtartalom mutatkozik (áttételesen). Látszik a MAB3 minta intenzívebb radioaktivitása az uránsor tagjainak megemelkedett aktivitása miatt van, vagy a tórium sor elemeinek lecsökkent aktivitása miatt.

A tórium nem várható, hogy a vízben mozog, beoldódik, és a toronexhaláció is kisebb hatású, ezért első közelítésben a tórium sor elemeinek csökkent aktivitása nem várható. A rádium aktivitásának növekedését várjuk a biofilmben, ami előfeltéves és ezen szemrevételezéses megállapítások után is fennáll. Kvantitatív kiértékelés után pontosabban is meghatározható. A rádiumtartalom a 186 keV-es csúcs területéből, radon- és toronexhaláció levegőben és vízben külön-külön Tricarb műszer segítségével mérhető.

Célunk a Molnár János Barlang 3 pontjában vett szilárd minták radonexhalációjának becslése, a mintavételkor használt tégelyekben lévő víz radonkoncentrációjának mérése alapján.

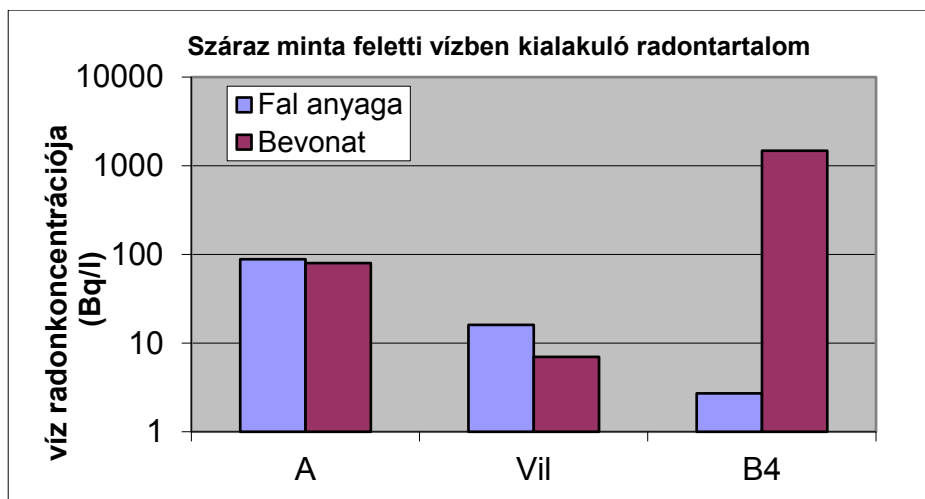
minta kódja	mintavételi hely neve	mintavétel ideje		koncentráció Bq/l	koncentráció hibája (Bq/l)
MAB1	MJB A	11.30.	18:00	80	7
MAB2	MJB Vil.	11.30.	18:00	7	2
MAB3	MJB B4	11.30.	18:00	1477	48
MAF1	MJB A	11.30.	18:00	88	7
MAF2	MJB Vil.	11.30.	18:00	16	2
MAF3	MJB B4	11.30.	18:00	2,7	2

6. táblázat: A 2016. december 3-ai mintákról levett víz radontartalmának vizsgálata. A mintaelőkészítés november 30-án történt, 4 napot várva az egyensúly beálltára.

6.2. Mérési eredmények

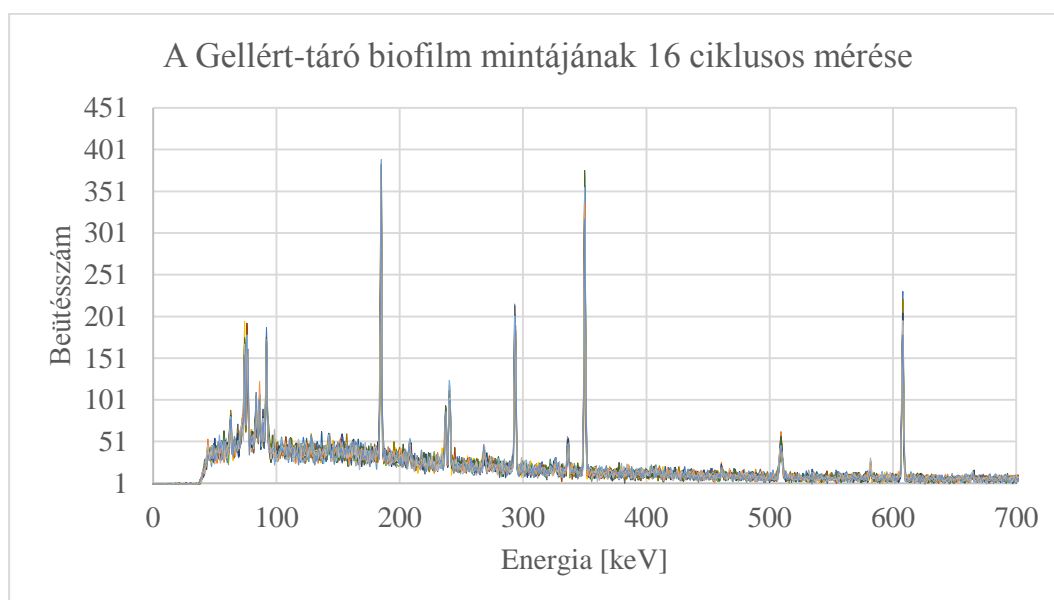
6.2.1. Gamma-spektroszkópiás mérések eredményei

A mintaelőkészítés során ügyeltem rá, hogy a hármas mintát, név szerint a MAB3-at a lehető leginkább szétválogassam az alkotóira. A 9. ábrán látható lapokként kaptam őket, a kétféle fekete bevonatot szín alapján, a két eltérő fehér „hordozó” anyagot keménysége alapján különböztettem meg. Az egyik egy puhább, fehér színű, kb. 2-es keménységűnek találtam. A másik inkább szürkés, kalcitra, aragonitra hasonlított, kristályos felületű (kristályalak nem kivehető), keménysége kb. 5-ös. Ez utóbbi nehezen szétválogatható volt, mert a bevonat a kristályok közé rakódott le, ezért a szeparált minta helyett a dúsított jelző jobban illik rá. Ez a legösszetettebb minta mind közül, és a 17. ábrán érzékelhetően kiemelkedik a társai közül, ezért lényegesen nagyobb figyelmet kapott.



21. ábra: A bolygatásmentes minta radonexhalációs mérése. Látható, hogy a 3-as bevonatminta egy 10-es faktorra aktívabb a másik mintáknál.

A műszer képes egymás után ütemezett mérések végrehajtására is. A morzsolt biofilm mintát egy 16x4 órás, ciklusos mérésnek vetettük alá. Az eredménye az alábbi ábrán látható. A 17-es ábrával összevetve megállapíthatjuk, hogy az átlag körül helyezkedik el, a 196 keV-es rádium csúcshoz tartozó 400-as beütésszámmal és kb. 3000-res nettó csúcs alatti területtel.



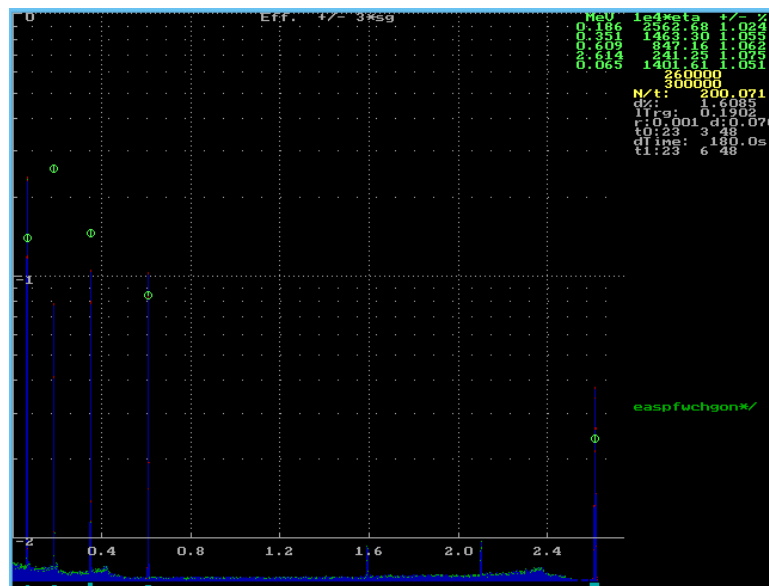
21. ábra: A GTBP1AM biofilm minta spektruma 16-szor 4 órás méréssel.

A minta tömegének és magasságának mérésén kívül szükségünk van a sűrűség kiszámítására. Ezt úgy kapjuk meg, hogy első lépésben az 1. táblázat szerint

meghatározzuk a kűvetta alapterületét, ami 1,32 cm. A kör területe $r^2\pi$, amit megszorozunk a minta magasságával, így megkapjuk a térfogatot. Ezután már csak osztani kell a tömeget a térfogattal, ami a sűrűség értékéhez vezet.

$$\rho = \frac{m}{V} = \frac{m}{r^2\pi \cdot h}$$

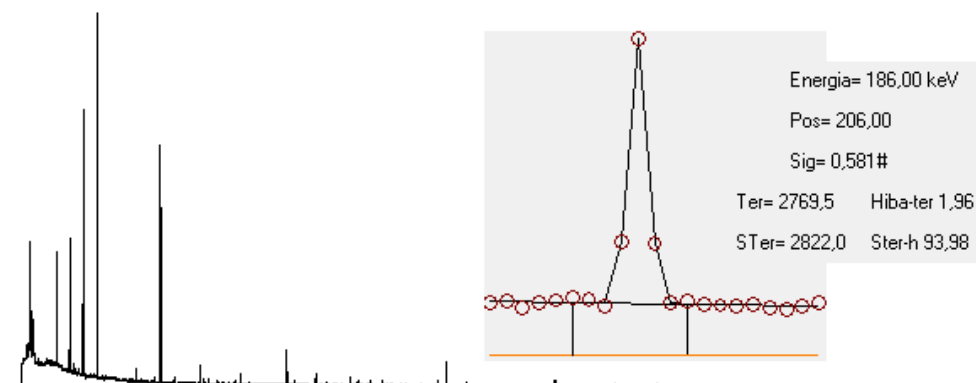
Az aktivitás kiszámításához szükségünk van továbbá a detektálási határfok kiszámítására is. Ehhez a Monte-Carlo program nyújt alapvető segítséget. A szoftvernek szüksége van a minta magasságára, a kűvetta alapterületére, az anyag molekulatömegére (esetünkben 100, CaCO₃-tal számolva), valamint a minta sűrűségére. Szükség van továbbá a csúcsok megnevezésére MeV-ben, melyekre kiszámolnánk a hatásfokot – ez a 0,186; 0,351; 0,609; 2,614; 0,065 megaelektronvoltokra történt meg. Az alábbi ábrán látható a program számolás közben.



22. ábra: A hatásfokot számoló program. A jobb felső sarokban láthatóak a változó értékek relatív hiba szerint.

A relatív hiba folyamatosan javul, minél több időt szánunk a program lefutására. A hiba exponenciálisan csökken az idő függvényében, kezdetben gyorsan változik, majd egyre több idő kell, hogy változás lépjen fel a hiba értékében. A programmal megkerestük a 1,0 relatív hibához tartozó hatásfokértéket.

A SPILL 5.2 programmal történt a gamma spektrumok kiértékelése. A spektrumok betöltését egy gyors kalibráció követi. 2-3 pont alapján pontosítható az x-tengely, amit esetünkben a 186 és 609 keV-es csúcsra kalibráltunk. Ezek után a csúcsot kiválasztva a program gauss-görbét illeszt az adott csúcsra és meghatározza a görbe alatti területet.



23. ábra: A Spill 5.2 program megjelenített spektruma. Y-tengelyen a beütésszám, x tengelyen a csatornaszámból kalibrált energia keV-ban.

Az aktivitás kiszámításához az alábbi képlet használható:

$$A = \frac{T - T_{\text{háttér}}}{\eta \cdot \varepsilon \cdot t}$$

ahol η a hatásfok, ε a relatív gyakoriság, t a mérés során eltelt idő. A háttér meghatározására egy 4 napos háttérmérést végeztünk (üres műszer). A spektrumból meghatározható a háttérből érkező beütések száma, ami utána egy napos értékre normálható (osztani kell négygel) és a számlálóban a kivonás után megkapjuk a mintából származó beütésszámot. A mintában feltételezzük, hogy nincs urán, ezért a 186 keV-es csúcsot a rádiumnak tulajdonítjuk.

A következőkben arra a kérdésre keresem a választ, hogy mennyire számít a mért adatok tükrében, hogy zárt-e a minta rendszere. Méréseket végeztünk kupakkal zárt, illetve nyitott küvettába helyezett mintákkal. További mérés technikai kérdés lehet például, hogy a detektor közepére helyezzük-e a mintát, vagy a szélére. Mennyire befolyásolja kilépő részecskék detektálását, esetleg számít-e többletként az önnyelődés hatásában? A képlet alapján számolt aktivitásértékek az alábbi táblázatból olvashatóak.

Minta	Kupakkal zárt mérések		Kupak nélküli mérések	
	Aktivitás [Bq]	Fajlagos aktivitás [Bq/kg]	Aktivitás [Bq]	Fajlagos aktivitás [Bq/kg]
GTBP1AM	3,46	1291	4,21	1572
MAB1V	1,38	499	n.a	0
MAB1F	1,42	7274	n.a	0
MAB1M	12,19	2568	n.a	0
MAB2V	0,67	564	n.a	0
MAB2S	0,34	372	0,28	303
MAB3FK	9,78	19479	9,51	18937
MAB3FEH	3,20	1517	3,21	1520
MAB3PF	0,02	36	0,05	79
MAB3KF	13,04	5077	12,77	4974
MAB3SZ	5,50	20105	5,36	19576
MAB3F	4,20	17511	4,00	16712
MAF1P	0,33	85	1,38	348
MAF2P	0,84	144	0,83	141
MAF3P	0,28	45	0,23	38

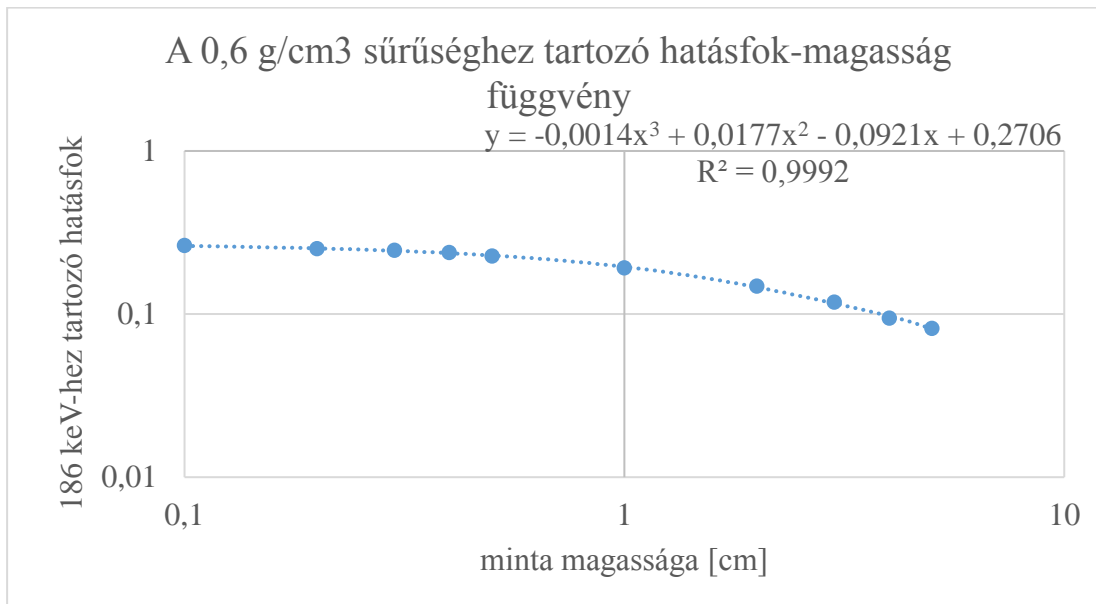
7.táblázat: A gamma-spektroszkópiával készült mérések eredményei.

A MAF1P esetében a két gamma-spektroszkópiai mérés nem egyezik meg, onnan adódik a nagy eltérés a két érték között, ezért összehasonlításra nem alkalmas. A továbbiakban a kupak nélküli értéket használom fel.

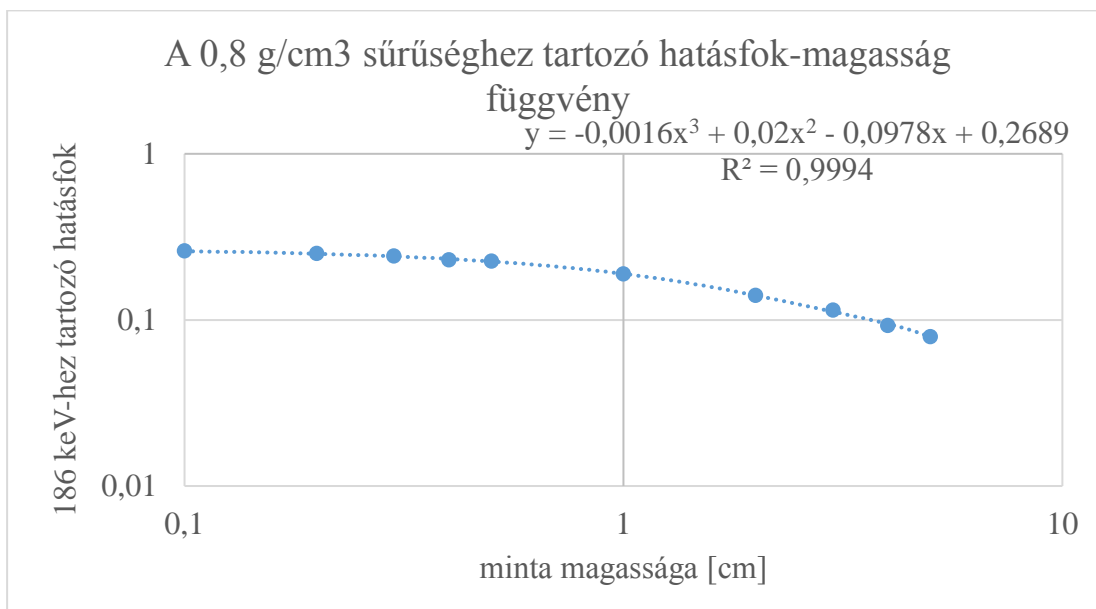
6.2.2. Méréstechnika: Hatásfok a magasság függvényében

A hatásfokot számoló programban a számolás során kiderül, hogy csak néhány paramétert kell esetünkben változtatni. Minden mintára kalcium-karbonáttal számoltunk, azaz mészkővel, mivel pontosan nem határoztuk meg mi alkotja a mintánkat. A laborban, szabad szemmel történő vizsgálatok, és a korábbiakban bemutatott barlangrendszer története szerint nem tévedhetünk nagyot (a fal anyagát tekintve). A molekulatömege tehát 100 g/mol, a küvetta paraméterei is állandóak. Csupán két paramétert kell változtatni, az adott minta sűrűségét és a minta magasságát a küvettaiban. Ezért lenne értelme néhány magasságra kiszámolni a hatásfokot és görbét illeszteni rá, adott sűrűségekre. A függvény egyenletéből visszszámolható a hatásfok a magasság beírásával. Az alábbi három ábra eredményein látszik, hogy logaritmikus tengelyen ábrázolva harmadfokú polinom illeszthető, három tizedesjegyre jó a determinációs együtthatóval. Mindez azért jó,

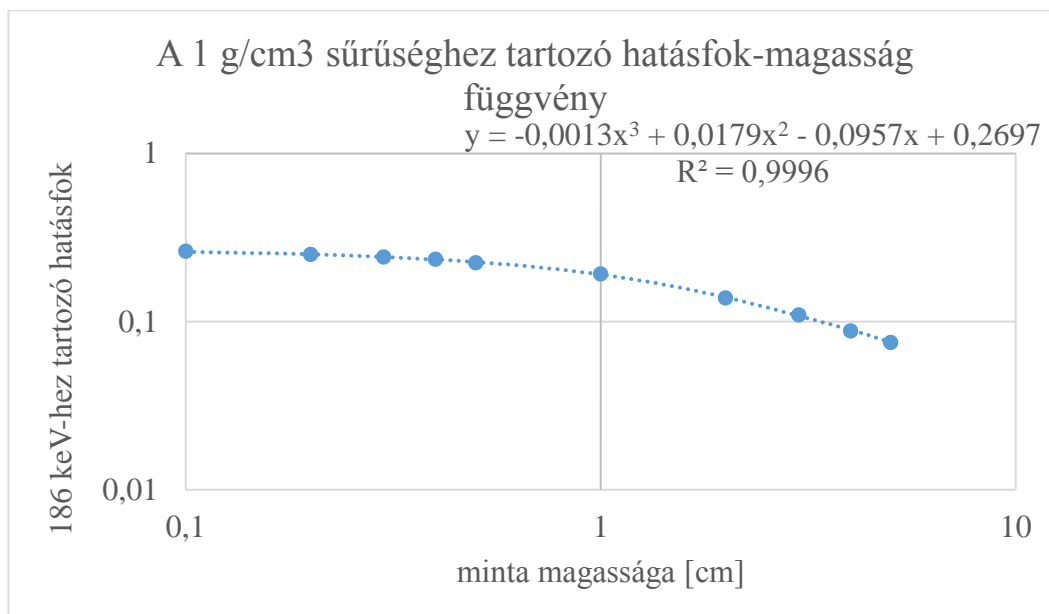
mert megkönnyíti, lerövidíti a számolást, így becslést lehet adni az aktivitásra, amíg a programok lefutnak a számolással.



24. ábra: 0,6 g/cm³ sűrűségre kerekíthető minta hatásfoka kiszámolható, ha a minta magasságát behelyettesítjük az x helyére az egyenletben. A kapott y érték lesz a detektálási hatásfok.



25. ábra: Az előző ábra alapján a 0,8 g/cm³ sűrűségre kerekíthető minta hatásfoka is kiszámolható.



26. ábra: A 24. és 25. ábrához hasonlóan 1 g/cm³ sűrűségre kerekíthető minta hatásfoka is kiszámolható.

Ellenőrzésképpen elvégeztem a GTBP1AM minta hatásfokának számolását az függvénybe helyettesítéssel és lefuttattam a programmal is. A minta sűrűsége 0,73, azaz a 0,8 g/cm³-hez tartozó egyenletet használtam. Az egyenlettel 0,212, a programmal számolva 0,205 lett az eredmény. A két érték között 0,007 az eltérés, a saját képletünk relatív hibája 3%.

6.2.3. Radonexhaláció mérése

Három mérést végeztünk 2017. május 16-17 és 23-án. A 16-ai méréskor csak ioncserélt vizet tartalmazott a mintán kívül a küvetta, ez cserenkov-sugárzás mérésnek tekinthető. A cserenkov-sugárzás akkor alakulhat ki, ha egy részecske (esetünkben elektron) egy közegben gyorsabban mozog, mint a közegbeli fénysebesség. Ha a küszöbenergiánál (~252 keV) nagyobb energiájú, azaz gyorsabb elektronok keletkeznek vízben, akkor létrejöhet a jelenség. A Cserenkov-sugárzás tulajdonképpen kék és uv fény tartományba eső elektromágneses sugárzás. Az E_k -nál nagyobb energiájú elektronok β -bomlások során keletkeznek. Ezeket igyekszünk megfigyelni a mérés során, ugyanis a mintában keletkező bomlások során keletkező részecskéket vizsgáljuk. A 17-én vizsgált exhaláció mérésével összehasonlítottuk a 16-ai CPM értékeket, de az eredmények között korrelációt nem

véltünk felfedezni. A determinációs együttható a nullához tart, azaz lineáris kapcsolat nem feltételezhető.

A víz radontartalmának mérése során az alábbi eredmények születtek.

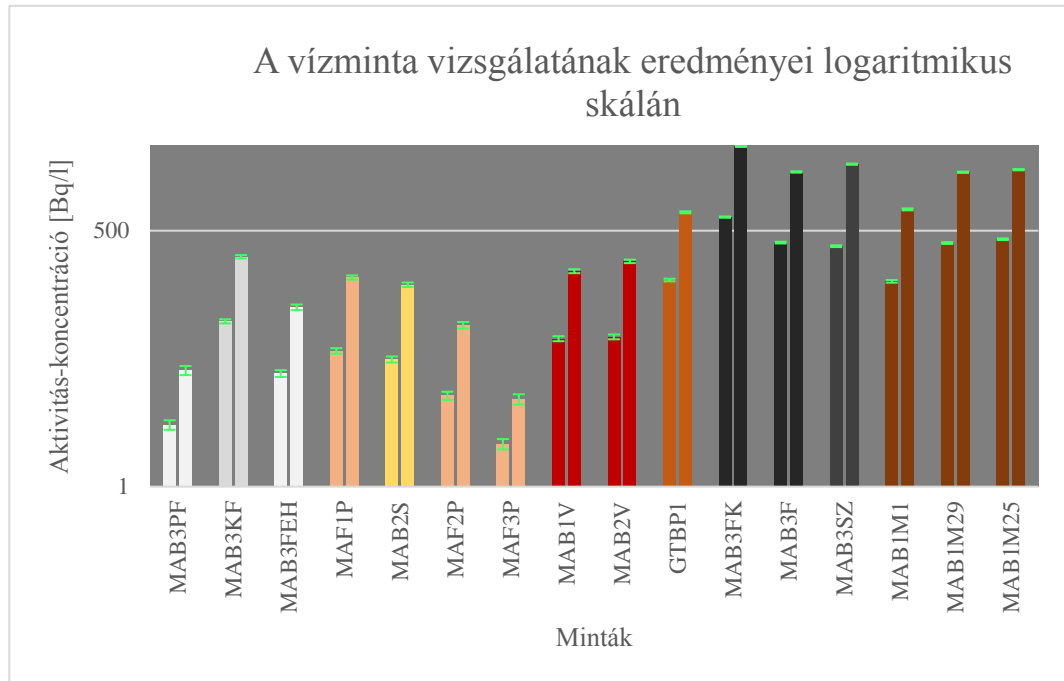


27. ábra: A 2017. május 17-ei (első oszlop) és 23-ai (második oszlop) mérések eredményei. A színek a mintaszínekre utalnak.

Az ábrán látható, hogy a korábbi becsléseknek eleget tettek az eredmények. A fekete bevonatminták lényegesen kiemelkednek a többi szeparált fázis közül. A két időpontban történt mérésnek köszönhetően rádöbentünk, hogy az exhaláció feltételezett időfüggése bonyolultabb, így számolásunk nem tükrözi a valóságot. Az egy nap elteltével született eredmények nagyobbak lettek (kb. az egy hetes mérési eredmények kétszerese), ezért feltételezhető, hogy az egy hét eltelte alatt (két felezési idő) beállt az exhalációs egyensúly. Ebből arra következtetünk, hogy a mintánkban az exhaláció folyamata gyorsabban zajlik le, mint az általános közetminták esetében. Ennek okai lehetnek:

- a diffúzió nagyobb mértéke
- a műanyag kivetta eresztése (érdeemes lenne összehasonlítani az üvegkuvettákkal).

Ismert azonban, hogy a bevonataink vörös és fekete biofilm bevonatok lehetnek, melyek mikroszervezetek, azaz nem jellemezhetőek kristályráccsal. Ezért ezeknek nagyobb exhalációt feltételezünk, mert nagyobb porozitású anyagok.



28. ábra: A 27. ábra logaritmusos skálán ábrázolva, így látható a többi eredmény is, az arányok azonban nem látszanak markánsan.

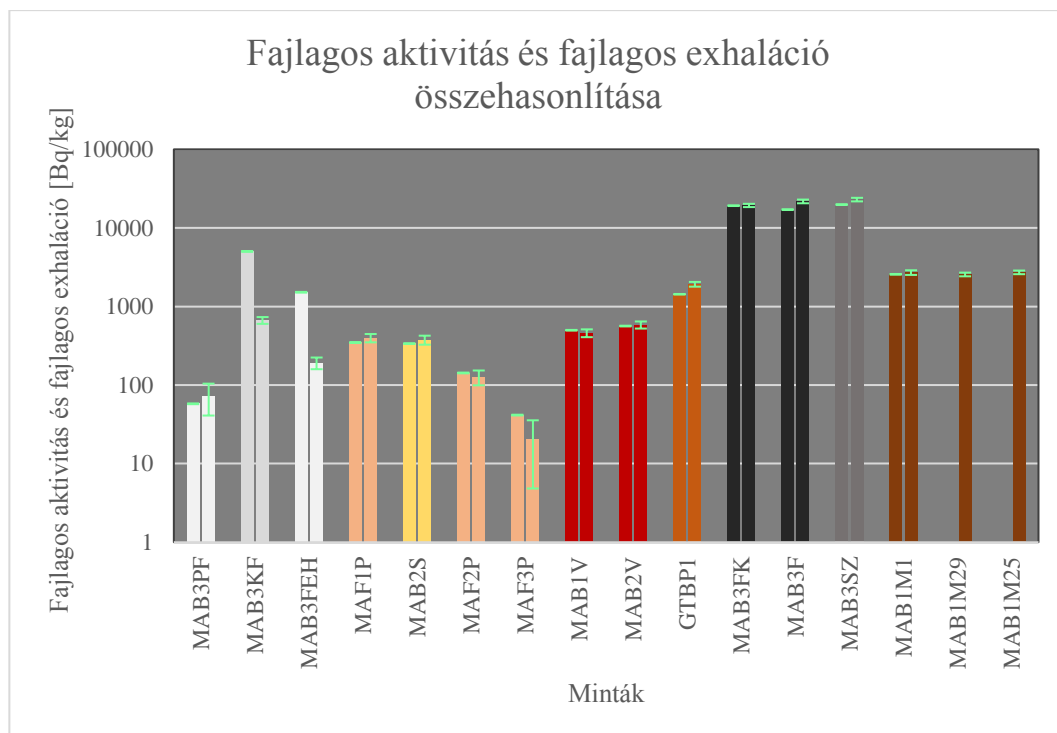
7. Diszkusszió

A dolgozatomban bemutattam a Molnár János-barlangból és a Gellért-táróból származó minták radonkoncentrációját, fajlagos aktivitását és fajlagos exhalációs értékét. Ezen kívül néhány mérés technikai kérdésre is válaszokat kerestem.

Az eredmények megfeleltek várakozásainknak, látszik, hogy a hármás, fekete bevonatminta aktivitása messze túlszárnyalja a többi mintát. Ez a szeparálás előtt is szépen látszott, majd a szétválasztásokkal kiderült, hogy a nagy beütésszám fekete, bevonat anyagnak köszönhető. Ebből az következik, hogy a barlangban térben változó a radioaktivitás mértéke. Azokban a termekben, ahol valamilyen kiválás található a falon, nagyobb aktivitásra számíthatunk.

	Fajlagos aktivitás [Bq/kg]	Fajlagos aktivitás hibája [Bq/kg]	Fajlagos exhaláció [Bq/kg]	Fajlagos exhaláció hibája [Bq/kg]
MAB3PF	58	1	73	32
MAB3KF	5025	51	668	66
MAB3FEH	1519	16	192	32
MAF1P	348	2	398	48
MAB2S	337	4	376	49
MAF2P	143	2	126	27
MAF3P	41	0,5	20	15
MAB1V	499	5	459	52
MAB2V	564	6	585	61
GTBP1	1431	13	1922	134
MAB3FK	19208	198	19364	931
MAB3F	17111	181	21789	1187
MAB3SZ	19840	201	22995	1201
MAB1M1	2568	27	2708	185
MAB1M29			2562	140
MAB1M25			2725	146

8. táblázat: A fő eredménynek tekintett fajlagos aktivitás és fajlagos exhaláció összefoglalása.



29. ábra: A kétféle méréstípus eredményeinek összehasonlítása. Első oszlopban az aktivitás, másodikban az exhaláció látható.

A fekete bevonatok fajlagos aktivitása 16-20 kBq/kg között változott. Az exhaláció mértéke az egy nappal a mintaelőkészítést követő mérésnél kb. 10 kBq/kg fajlagos exhaláció érték adódott. Az egy héttel a mintaelőkészítést követő mérés során az értékek 19-22 kBq/kg között változtak.

Az első konklúzió tehát az, hogy a vörös és a fekete biofilm bevonatok aktivitása nagy. A falnak és a hordozó anyagoknak kisebb az exhalációjuk, mert kristályos szerkezetűek, kristályrácsuk a mikron nagyságrendjében van, azaz a minta kevésbé engedi ki a radont az anyagából. A biofilmek nagyobb porozitásúak, nagyobb szemcsenagyságúnak tekinthetőek, röntgendiffrakcióval valószínűleg kimutatható lenne, hogy nem kristályrácsos szerkezetűek. Ezzel magyarázható a nagyobb exhalációjuk.

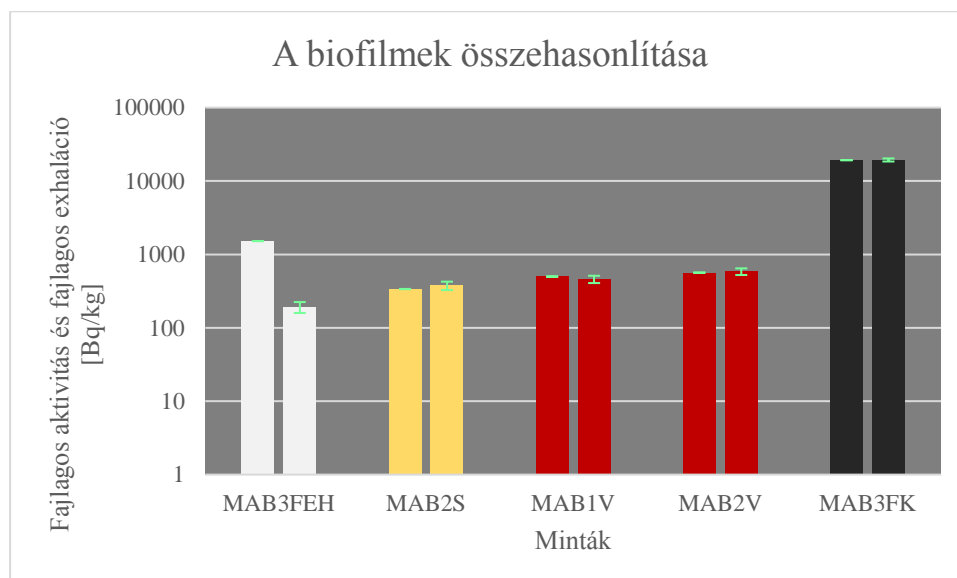
Előző sejtésünk azzal is mélyíthető, hogy az exhalációs együttható (vagyis a fajlagos exhaláció és a fajlagos aktivitás hányadosa) értéke 100%-hoz közeli. Ez azt jelentheti, hogy a bevonat nem ásványos kiválás, és nem is alakult át ilyenné. A bevonatokat élettelennek állapítottuk meg, továbbá azt gondoljuk, hogy a baktériumok ásványi környezetben élhetnek és nagy porozitású járatokat alakítanak ki. Ezeknek a feltevéseknek a bizonyítására további méréseket kellene végezni.

Néhány másik tanulmánnyal összehasonlítva a következőket szűrhetjük le. A 6. táblázatban feltüntetett 3-as bevonatminta 1477 Bq/l aktivitáskonzentráció értéke összehasonlítva a Boltív-forrás 45-82 Bq/l-es értékével kb. 20-szoros különbséget fedezhetünk fel. (Csondor, 2016) Ez a forrás a Rózsadomb előterében található.

Egy másik tanulmány szerinti Török-forrásban mért fajlagos exhaláció 300-600 Bq/kg, ennél az általunk vizsgált minta 20 kBq/kg-os értéke kb. 33-szor akkora, két nagyságrenddel nagyobb. (Freiler, 2010)

Érezhető, hogy komoly aktivitása van a Molnár János-barlang B4-es terméből származó falra rakódott bevonatnak. A nagy értékek miatt feltételezhető, hogy ezek a vizsgált baktériumok a többinél jóval nagyobb hatásfokkal építi a rádiumot a felületére. A 6. táblázat alapján látszik a vizek eltérő aktivitása, holott a barlangban ugyanaz a víz áramlik a három teremben (a MAB2 és MAB1 esetén is, mint a MAB3-nál). Ezeknél azonban nem kaptunk extrém értékeket, azaz helytálló a feltételezés, hogy a barlang B4-es termében más baktérium található, mint a többi helyen. A Molnár János-barlang rádiumtartalma sem lesz 100-szor nagyobb az egyik helyen, mint a másikon, ami szintén alátámasztja elképzeléseinket.

A kupak és kupak nélküli gamma-spektroszkópiai vizsgálatok között egyértelmű, markáns különbséget nem sikerült felfedeznem. Az értékek változóak, de nem dönthető el biztosan, hogyan érdemesebb mérni.



30. ábra: A bevonatminták színes fázisainak összehasonlítása.

Mindennek tükrében elmondható, hogy egy kivételes képződményről van szó, a további konklúziók levonásához érdemes lenne egy elemanalízist végezni, ami a jövőben biztosan megtörténik majd. A barlangi-források, felszín alatti vizek vizsgálata nélkülözhetetlen (hidro)geológiai és radioaktivitás szempontokból. A hasonló hévizek feltérképezése fontos feladat, amelyek ismerete egyre bővül hála a különféle vizsgálatoknak.

8. Köszönetnyilvánítás

Elsősorban szeretném megköszönni témavezetőmnek Dr. Horváth Ákosnak a segítségét, mind a mérések során nyújtott szakértelméért, mind a dolgozat írása közbeni tanácsaiért.

Köszönöm az ELTE Atomfizikai Tanszékének, hogy rendelkezésemre bocsátotta a műszereket.

Köszönöm Dr. Szieberth Dénesnek, hogy a Molnár János-barlang 3 állomásáról 6 mintát a rendelkezésemre bocsátotta.

Köszönöm az ELTE Általános és Alkalmazott Földtani Tanszék oktatóinak és doktoranduszainak, hogy saját kutatásukba betekintést nyerhettem és a Gellért-táróban végzett mérések során mintát vehettem a kialakított mederben kiszáradt biofilmből.

9. Irodalomjegyzék

- Csondor K.: A Boltív-forrás radon tartalmának lehetséges eredete, TDK dolgozat, Budapest, 2016
- Dési S.: Nukleáris detektorok, Tankönyvkiadó, Budapest, 1966
- Dódi D.: Atommag-sugárzások mérés technikái, Typotex, 2006
- ELTE TTK Atomfizikai Tanszék: GAM – Gamma-spektroszkópia (Alkalmazott Fizikai Módszerek Laboratórium mérésleírása)
- ELTE TTK Atomfizikai Tanszék: FSS – Folyadékszcintillációs spektroszkópia (Alkalmazott Fizikai Módszerek Laboratórium mérésleírása)
- ELTE TTK Atomfizikai Tanszék: REX – Radonexhaláció mérése (Sugárzások fizikája laboratórium mérésleírása)
- ELTE TTK Atomfizikai Tanszék: Vizek radontartalmának mérése, Tricarb (<http://atomfizika.elte.hu/muszerek/tricarb/>)
- Eröss A., Mádlné Szőnyi J., H. Surbeck, Horváth Á., N. Goldscheider, Csoma A. É.: Radionuclides as natural tracers for the characterization of fluids in regional discharge areas, Buda Thermal Karst, Hungary, Journal of Hydrology, 2012
- Freiler Á.: A természetes radioaktivitás vizsgálata a Rudas-fürdő Török-forrásában, TDK dolgozat, Budapest, 2010
- Glenn F. Knoll: Radiation Detection and Measurement, 4th edition, Hoboken, NJ: Wiley, 2012
- Heinz Richter: Radioaktív sugárzások elektromos mérőműszerei, Műszaki Könyvkiadó, Budapest, 1958
- Jobbágy V.: NORM anyagok radionuklid koncentrációját és emanációját befolyásoló paraméterek vizsgálata építőipari felhasználhatóság szempontjából, Doktori értekezés, 2007
- Karádi V., Pelikán P., Haas J.: A Budai-hegység felső-triász medence kifejlődésű dolomitjainak conodonta biosztratigráfiája, Budapest, 2016
- Korpás L., Fodor L., Magyarai Á., Dénes Gy., Oravecz J.: A Gellért-hegy földtana, karszt- és szerkezetfejlődése, Karszt és barlang, Budapest, 2002,
- Köteles Gy.: Sugáregészségtan, Medicina Könyvkiadó Rt, Budapest, 2002
- Köteles Gy.: Radioaktivitás a környezetünkben, Fizikai szemle, 1994

- L. V. Grosev – J. Sz. Sapiro: Atommag-spektroszkópia, Akadémia kiadó, Budapest, 1958
- Leél-Össy Sz.: A budai Rózsadomb és környékének különleges barlangjai, Földtani közlöny, 1995
- Palotai Márton, Mádlné Szőnyi Judit, Horváth Ákos: A budapesti Gellért- és a József-hegy felszín alatti vizeiben mért radon- és rádiumtartalom lehetséges forrásai, Általános Földtani Szemle 29, 25–40, Budapest, 2005
- Sas Z., Szántó J., Kovács J., Somlai J., Kovács T.: Influencing effect of heat-treatment on radon emanation and exhalation characteristic of red mud, Journal of Environmental Radioactivity Volume 148, 2015
- Tóth Árpád: A lakosság természetes sugárterhelése, 1. kötet, Akadémiai kiadó, Budapest, 1983
- UNSCEAR: Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Comitee on the Effects of Atomic Radiation, Report to the General Assembly, United Nations, New York, Sources, 2000

Internetes Források

<http://oktoport.hu/epített-környezetünk-természetes-radioaktivitása>

<http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>

http://www.buvarinfo.hu/zartterimerulesek/2016/20160502_talalkozas_a_mult_es_a_jelen.html

https://www.bme.hu/hirek/20130829/katalizatorkutatas_Bolyai-osztondijbol_egy_maceras_molekula_megszeliditesere

<http://www.t-es-t.hu/minden/tudom/radon.htm>

<http://www.mjcave.hu/hu/barlang>

http://www.eletestudomany.hu/kutatolaboratorium_a_fovaros_alatt

Rieth József: Anyagvilág

(http://www.rieth.hu/Vilagom/12a_Fuzio.htm)

NYILATKOZAT

Név:

Neptun azonosító:

ELTE Természettudományi Kar, **Környezettudomány mesterszak,**
.....**szakirány**

Diplomamunka címe:

A diplomamunka szerzőjeként fegyelmi felelősségem tudatában kijelentem, hogy a dolgozatom önálló munkám eredménye, saját szellemi termékem, abban a hivatkozások és idézések standard szabályait következetesen alkalmaztam.

Tudomásul veszem, hogy plágiumnak számít:

- szó szerinti idézet közlése idézőjel és hivatkozás megjelölése nélkül;
- tartalmi hivatkozás a forrás megjelölése nélkül; – más személy publikált gondolatainak saját gondolatként való feltüntetése.

Kijelentem továbbá, hogy a diplomamunka leadott nyomtatott példányai és elektronikus változata szövegükben, tartalmukban megegyeznek.

Budapest, 20

a hallgató aláírása