

Környezeti radioaktivitás

M. NAGY Noémi* és KÓNYA József

Debreceni Egyetem, Fizikai Kémiai Tanszék, Imre Lajos Izotóplaboratórium, Egyetem tér 1. 4032 Debrecen, Magyarország

1. Bevezetés

A 19. századra a természettudományos felfedezések nagyon tetszetős képet alakítottak ki az anyagról, melyet jól kifejeznek a Lavoisier, Dalton és Avogadro által felismert törvények. Ezek szerint az elemi tulajdonságok hordozói az atomok, az anyag örökéletű, megváltoztathatatlan részecskéi, ugyanannak a kémiai elemnek az atomjai pedig alakra és tömegre nézve egymással teljesen azonosak. Ugyanebben az időben ismerték fel a termodinamika alaptörvényeit, melyek közül az I. főtétel az energia megmaradásán alapult.

Ezt a képet tette kétségessé Henry Becquerel felfedezése¹. Megfigyelték, hogy a röntgensugárzás keltésénél az antikatód mögötti térben foszforeszcencia sugárzás lép fel. Becquerel azt vizsgálta, hogy a jelenség megfordítható-e, vagyis a foszforeszcencia-sugárzást kísérő-e röntgensugárzás. Ultraibolya sugárzás hatására foszforeszkáló dikálium-uranilszulfátot napfényre tett ki, fekete papírba csomagolta, majd fényképezőlemezre helyezte és feketedése alapján következtetett a röntgensugárzás jelenlétére. Úgy tűnt, kísérlete pozitív eredménnyel járt, további vizsgálatok során azonban arra a megállapításra jutott, hogy felesleges a sötét előzetesen fényvel megvilágítani, mivel a feketedést okozó sugárzás nem röntgensugárzás, hanem az uránsó sajátosága. A Curie-házaspár, Pierre Curie és Maria Skłodowska, tórium-vegyületeknél hasonló sugárzást tapasztaltak. Megállapították, hogy az urán- és a tórium-vegyületek ércei nagyobb mértékben sugároznak, mint a tiszta urán- és tórium-vegyületek. Uránércből kinyertek két sugárzó elemet, a polóniumot és a rádiumot². Rutherford 1889-ben felismerte az α - és a β -sugárzást. Rutherford és Soddy 1903-ban magyarázatot adtak a sugárzó anyagok természetére, azaz kimondták, hogy bizonyos atomok radioaktív sugárzás kibocsátása közben spontán átalakulnak.

A Curie-házaspár a periódusos rendszeren két lyukat „foldozott be”. A későbbi kutatások során azonban egyre több új radioaktív elemet fedeztek fel, amelyek kémiai tulajdonságaikban hasonlítottak egymásra, ill. a periódusos rendszer már ismert stabil elemeire, csak radioaktív tulajdonságaikban voltak eltérőek. Így a periódusos rendszer azonos helyére kellett volna kerülniük, ami természetesen az akkori szemlélet szerint elképzelhetetlen volt.

Ezek a kutatások és maga az új tudományág az említett tetszetős anyagképpel rendkívül erős ellentmondásban voltak. Az ellentmondások egy részét Einstein oldotta fel, amikor kimondta, hogy a tömeg és az energia az anyag két megjelenési formája és felállította az ekvivalencia elvet:

$$E = mc^2 \quad (1)$$

ahol E az energiaváltozást, m a tömegváltozást és c a fénysebességet jelenti.

Az ellentmondások másik részét Soddy oldotta fel, amikor bevezette az izotópia fogalmát, és ezzel elvetette a daltoni atomelméletnek azon megállapítását, hogy az elemek minden atomja teljesen azonos.

Fontos kiemelni, hogy **Bequerel** felfedezte a radioaktivitást, tehát **egy korábban is létező, természetes jelenséget ismert fel. A radioaktív sugárzás a Föld története, az evolúció során mindig jelen volt, ahogy ma is. A természetes radioaktív izotópok a lito-, hidro-, atmo- és bioszférában egyaránt jelen vannak.**

Mit adhatott és adhat ez a tudományág a tudomány egészének, illetve milyen gyakorlati feladatok megoldásában segített és segíthet?

Egyrészt megalapozta a modern anyagszerkezeti kutatásokat és anyagszemléletet, melynek következtében új tudományterületek alakulhattak ki. Másrészt lehetővé vált bizonyos jelenségek magyarázata. Ezek közül az Univerzum kialakulását, illetve az elemek keletkezésének természet-tudományos magyarázatát emeljük ki. A XX. század első felében anyagszerkezeti, nukleáris és részecskekutatásokért 42 fizikai, kémiai, ill. orvosi Nobel díjat ítéltek oda³.

A legfontosabb gyakorlati alkalmazások a nukleáris energiatermelés, a nukleáris medicina és a környezettudomány.

2. Természetes radioaktív izotópok³

Mintegy 40 elemnek van természetes radioaktív izotópja, illetve a technéciumnak, a proméciumnak, valamint a 83-nál nagyobb rendszámú elemeknek csak radioaktív izotópjai vannak. Ezeket a következő csoportokba sorolhatjuk:

1. A 83-nál nagyobb rendszámú elemek nuklidjai a három természetes radioaktív bomlási sor (^{238}U , ^{235}U és ^{232}Th bomlási sorai) tagjai. Ezek közül a jelentősebbek a ^{226}Ra és leányeleme, a ^{222}Rn , a lágy β -sugárzó ^{210}Pb , a β -sugárzó ^{210}Bi , az α -sugárzó ^{210}Po , valamint a tórium bomlási sor rövid életű tagja, a ^{220}Rn .
2. A Föld kialakulása óta jelenlevő, nagyon hosszú életű radioaktív magok, amelyek egy lépésben stabil magokra bomlanak, mint pl. ^{40}K , ^{50}V , ^{87}Rb , ^{113}Cd , ^{115}In , ^{123}Te , ^{138}La , ^{144}Nd , $^{147,148}\text{Sm}$, ^{152}Gd , ^{156}Dy , ^{174}Hf , ^{176}Lu , ^{186}Os , ^{187}Re , ^{190}Pt . Ezeket nukleogenezis, vagy primordiális izotópoknak nevezzük.

* Tel/fax: +36-52-512-900/22263, nagy.noemi@science.unideb.hu

3. Azok a természetes radioaktív magok, melyek a légkörben jelenlevő nem radioaktív magok (főleg nitrogén, oxigén és argon) és a kozmikus sugárzás magreakcióiban keletkeznek. Ilyenek a ^3H , $^{7,10}\text{Be}$, ^{14}C , ^{22}Na , ^{26}Al , $^{32,33}\text{P}$, ^{35}S , ^{36}Cl , ^{39}Ar . Ezeket kozmogén radionuklidoknak hívjuk.

3. Természetes radioaktív izotópok felhasználása

A mesterséges radioaktív izotópok előállításának elterjedését, azaz először a gyorsítók, majd az atomreaktorok alkalmazásáig minden kutatási és gyakorlati célra a természetes radionuklidokat használták. Mára jelentőségük csökkent, azonban a következő tudományterületeken ma is egyedülálló információkat adnak.

3.1. Földtörténeti és történeti korok meghatározása

A radioaktív módszerekkel végzett kormeghatározások alapján a Föld korát kb. 4,6 milliárd évre, a szilárd kéreg korát kb. 3,6 milliárd évre becsülik. A következőkben ismertetjük azokat a legfontosabb módszereket, amelyeken ezek a becslések alapulnak.

3.1.1. Kormeghatározás ólomizotópok aránya alapján

A radioaktív bomlási sorokat felhasználhatjuk kőzetek korának meghatározására. Ehhez feltételezzük, hogy a kőzet keletkezésekor csak a bomlási sor kiindulási izotópjai keletkeztek, a bomlási sor végét jelző ólomizotópok csak ezután képződhetnek. A jelenlevő ólomizotópok mennyiségét tehát a kőzet keletkezése óta eltelt idő határozza meg. A kormeghatározásra lehetőséget ad az ólom és az urán arányának mérése, ez azonban a két elem meglehetősen eltérő kémiai, geokémiai tulajdonságai miatt bizonytalaná teszi a meghatározott kort. Pontosabb eredményt ad, ha figyelembe vesszük a természetes urán izotópösszetételét, azaz azt a megfigyelést, hogy manapság a természetben az urán 235-ös és 238-as tömegszámú izotópjai 1:139 arányban fordulnak elő. A két uránizotóp bomlási sorának stabil ólomizotópjainak (207-es és 206-os tömegszámok) arányából az uránizotópok bomlássebességi állandóinak ismeretében következtethetünk a kőzet korára. A meghatározás előnye az, hogy még akkor is helyes eredményt ad, ha az idők során a kőzetből az ólom kimosódott, mivel az ólomizotópok aránya, ha az izotópeffektustól eltekintünk, ettől nem változik.

3.1.2. Kormeghatározás héliumkoncentráció alapján

A ^{238}U -izotóp bomlási sorában nyolc, a ^{235}U -izotóp bomlási sorában hét, a ^{232}Th -izotóp bomlási sorában pedig hat alfa-bomlás fordul elő. Mivel az alfa-sugárzás hélium atommagokból áll, a kőzetekben felgyűlt hélium gáz mennyiségéből következtetni tudunk a kőzet keletkezése óta eltelt időre. A módszer természetesen csak akkor ad helyes eredményt, ha a kőzet az eltelt idő alatt végig megtartotta a hélium gázt, az onnan nem tudott kiszabadulni. 1 g uránból 1 év alatt $1,195 \cdot 10^{-4} \text{ mm}^3$, 1 g tóriumból pedig $2,9 \cdot 10^{-5} \text{ mm}^3$ hélium keletkezik. A módszer alkalmazásához tehát ki kellett dolgozni a kis mennyiségű gáz mennyiségi meghatározását.

3.1.3. Kormeghatározás az urán hasadása alapján

Az urán spontán hasadásánál különböző xenonizotópok keletkeznek ($^{129, 131, 132, 133, 136}\text{Xe}$), melyek felgyülemlett mennyiségéből az uránércet tartalmazó kőzetek kora meghatározható. A szilikátos kőzetekben levő urán a spontán hasadáson kívül a kozmikus sugárzás neutronjai hatására is hasad. A hasadványok csillag alakzatban roncsolják a szilikátok szerkezetét. A roncsolt göcök hidrogén-fluoriddal előhívhatók és mikroszkóppal megszámlálhatók. A nyomok számából a kőzet korára lehet következtetni.

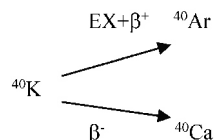
3.1.4. Üledékek kormeghatározása ^{210}Pb -izotóp aktivitása alapján

Az ^{238}U bomlási sorának viszonylag hosszú felezési idejű tagjai a ^{226}Ra és ^{210}Pb (1620 és 21,6 év). A kettő közötti tagok felezési ideje viszonylag rövid, így kb. 200 év alatt szekuláris egyensúly alakul ki a ^{226}Ra és ^{210}Pb között. 200 évnél idősebb kőzetekben, illetve a belőlük keletkezett üledékekben a ^{210}Pb radioaktivitása állandó.

Az ennél fiatalabb üledékekben ehhez képest megnövekszik a ^{210}Pb aktivitása, mivel a ^{226}Ra leányeleme, a ^{222}Rn gáz halmazállapotú, és egy része kiszökik az atmoszférába. Ott bomlása természetesen ugyanúgy folytatódik, és szilárd halmazállapotú leányeleme, az ^{210}Pb kimosódik a levegőből és bekerül a friss üledékbe. Az aktivitásnövekményből következtethetünk az üledék korára⁴.

3.1.5. Kormeghatározás argonkoncentráció alapján

A ^{40}Ar -izotóp keletkezésének egyetlen forrása a ^{40}K -izotóp elágazó bomlása:



Amennyiben a keletkezett argon gáz a kőzetből nem tud kiszabadulni, akkor a felgyűlt argon mennyiségéből a ^{40}K bomlási állandójának ismeretében kiszámítható kőzet kora. A ^{40}K bomlásánál a keletkező ^{40}Ca -t nem használják, mivel a ^{40}Ca -izotóp keletkezésének más forrása is lehet.

3.1.6. Kormeghatározás ^{87}Rb - ^{87}Sr anya-leányelem pár alapján

A hosszú felezési idejű ($4,88 \cdot 10^{10}$ év) ^{87}Rb -ból béta-sugárzás kibocsátása közben ^{87}Sr keletkezik. A $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ -arányból történő kormeghatározás (3.1.5. fejezet) azonban itt közvetlenül nem alkalmazható, mivel a ^{87}Sr -izotóp nem csak a ^{87}Rb bomlásából keletkezik, hanem a kőzetek képződése során is jelen volt. Mivel ezt a kezdeti mennyiséget közvetlenül nem ismerjük, a mérések során a ^{86}Sr mennyiségét, vagyis a stronciumizotópok arányát is meg kell határozni. A ^{86}Sr stabilis izotóp, mennyisége a Föld története során nem változott. Ha azonos genetikájú kőzetekben vagy ásványokban meg tudjuk határozni a ^{86}Sr , ^{87}Sr és ^{87}Rb mennyiségét, és a $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ arányát ábrázoljuk a $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ arányának függvényében, egyenest kapunk. A kőzet kora az egyenes meredekségéből számítható⁵.

3.1.7. Történelmi korok meghatározása ^{14}C -izotóp alapján

Libby fedezte fel, hogy a szén radioaktív formája, a ^{14}C -izotóp, a természetben a légköri nitrogénből keletkezik a kozmikus sugárzás által keltett neutronok hatására a $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ magreakcióban. Amennyiben az idők folyamán a kozmikus sugárzás által keltett neutronok fluxusa nem változik, akkor a keletkezés és a bomlás együttes hatására a légkör ^{14}C -koncentrációja állandó értéket ér el. Az élő szervezetek folytonos anyagcserében vannak a légköri szén-dioxiddal, tehát szervezetükben a ^{14}C -koncentráció, azaz a $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ izotóparány ugyanakkora. Ha azonban az élőlény elpusztul, megszűnik az anyagcsere, csak a ^{14}C radioaktív bomlása játszódik le. A ^{14}C -izotóp koncentrációja, és így aktivitása ettől kezdve folyamatosan csökken. A pillanatnyi $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ arányból az élőlény elhalása óta eltelt idő határozható meg. A ^{14}C felezési idejére hagyományosan 5570 évet használnak (a valódi, később pontosabban meghatározott felezési idő 5736 év). Ez azt jelenti, hogy az ezres nagyságrendtől kb. 35 000 évig végezhető kormeghatározás.

Ha a kozmikus sugárzás által keltett neutronfluxus az időben változik, akkor bizonyos korrekciókra van szükség. Ugyanakkor ismert korú minták $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ arányából a kozmikus sugárzás intenzitásának változása is becsülhető.

A levegőben levő nitrogénből a kozmikus neutronok hatására trícium is keletkezik az alábbi magreakciókban: $^{14}\text{N}(n,3\ ^4\text{He})\text{T}$ és $^{14}\text{N}(n,\text{T})^{12}\text{C}$. A tríciumizotópra ugyanazok az elvek lennének igazak, mint a ^{14}C -izotópra. A trícium felezési ideje 12,35 év, tehát elvileg alkalmas lenne tíz-nyolcvan év nagyságrendű korok (pl. palackozott borok) korának meghatározására. A légköri atomrobbantások azonban a légköri trícium-koncentrációt oly mértékben megzavarták, hogy az ily módon történő kormeghatározás gyakorlatilag nem lehetséges.

3.2. Egyéb földtudományi alkalmazások

3.2.1. Rádiumizotópok arányának felhasználása az óceánok keveredési folyamatainak vizsgálatában

A különböző bomlási sorokban keletkező rádiumizotópok, az ún. rádium-kvartett (Ra-223 (U-235 bomlási sorból Ra-224 és Ra-228 (Th-232 bomlási sorából), Ra-226 (az U-238 bomlási sorából)) aktivitásának változását nyomjelzőként használják az óceánok keveredési folyamatainak vizsgálatára. Különböző felezési idejük miatt különböző időskálájú változások figyelhetők meg. Tanulmányozhatók az óceánok szélein bekerülő anyagok keveredési folyamatai, a felső és alsó óceáni rétegek keveredése, a parti keveredések, a tengerfenék alatti vizeknek az óceánban levő nyomelemek (fémek) és tápanyagok anyagmértékére gyakorolt hatása, valamint azok a víz-kőzet kölcsönhatások, melyek mobilizálják az U- és a Th-sorok radionuklidjait⁶.

3.2.2. Radonizotópok arányának felhasználása

A radonizotópok (^{222}Rn a ^{238}U , ^{220}Rn a ^{232}Th bomlási sorából) koncentrációja/aktivitása alapján az atmoszférában, a hidroszférában és a litoszférában lejátszódó különböző környezeti folyamatokat vizsgálhatunk. Tanulmányozhatjuk a légtömegek eredetét, mozgásirányát, a légköri aeroszolok kimosódását, a felhőcseppek keletkezését, ami befolyásolja a radonizotópok eloszlását. A radonizotópok eloszlása a felszíni vizek és az áramlások, folyók érintkezésének mértékétől is függ. Mivel az áramlásokban és folyóvizekben a radon tartózkodási ideje viszonylag rövid, ezek a kölcsönhatások a víztestek radon-tartalmának csökkenését okozzák. A radonizotópok a tektonikus és vulkáni aktivitás potenciális nyomjelzői, felhasználhatók a remediáció és hulladéklerakók monitorozására, valamint felszíni szén-dioxid fluxus becslésére is⁷.

4. Mesterséges radioaktív izotópok

4.1. Nukleáris hulladékok keletkezése és csoportosítása³

A mesterséges radioaktív izotópok keletkezésével járó munkák egyik legfontosabb környezetvédelmi problémája a radioaktív hulladék biztonságos kezelése és tárolása. Radioaktív hulladékok nukleáris medicinában, az ipari alkalmazásokban és kutatólaboratóriumokban is keletkeznek, fő forrásuk azonban a nukleáris energiatermelés. Atomreaktorokban radioaktív izotópok a következő módon keletkezhetnek:

1. az ^{235}U hasadásának ((n,f) magreakciójának) termékeiként
2. az ^{238}U (n,) reakciójában transzurán elemek (neptúnium, plutónium, amerícium és kevés kúrium)
3. az atomreaktorok szerkezeti anyagainak és környezetének (n,) reakcióiban (^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{41}Ar , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{65}Zn , ^{110}Ag).

Radioaktív hulladék keletkezik az atomreaktorok fűtőelemeinek előállításánál, illetve a kiegészítő fűtőelemek feldolgozása (reprocessálás) során is.

Az említett tevékenységek során gondosan ügyelnek arra, hogy a környezetbe jutó radioaktív izotópok mennyisége a lehető legkisebb legyen. Ezzel szemben a nukleáris fegyverkísérletek és bombák bevetése (Hirosima és Nagaszaki, 1945. augusztus) során jelentős mennyiségű radioaktív izotóp került ki. Egy 1000 tonnás hagyományos trinitro-toluol (TNT) bombával egyenértékű atombomba robbanása során 48,5 g hasadási termék kerül az atmoszférába. Ez a tömeg nem tűnik soknak, azonban ennek radioaktivitása igen magas: $3,7 \times 10^{21}$ Bq. Mivel a hasadványok jelentős része rövid felezési idejű, ez az aktivitás 24 óra alatt $5,9 \times 10^{16}$ Bq-re csökken. A sztratoszférába került radionuklidok hét év felezési idővel hullanak ki a föld felszínére.

A hosszú idejű radioaktív szennyezés nyilvánvalóan a hosszú idejű radioaktív izotóptól származik. S legfontosabbak a ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{95}Nb , ^{106}Ru , ^{106}Rh , ^{140}Ba , ^{140}La , ^{144}Ce , ^{144}Pr , és Pu . 1963-ig $1,2 \times 10^{16}$ Bq (kb. 400 kg) ^{239}Pu került az atmoszférába. Az Egyesült Állomok, a Szovjetunió és az Egyesült Királyság 1963-ban megkötötte az Atomcsend Egyezmény, mely megtiltja a nukleáris fegyverkísérleteket az atmoszférában, víz alatt és a világűrben egyaránt. Az egyezményhez számos ország csatlakozott, több, atomfegyverrel rendelkező ország azonban nem. Az Egyezménynek köszönhetően 1963 óta az atmoszféra radioaktivitása az 1961 és 1965 közötti maximumhoz képest jelentősen csökkent. Jelentősebb mennyiségű radioaktív anyag került a környezetbe a csernobili és a fukusimai reaktorbalesetek során.

Az ^{235}U hasadása során, függetlenül attól, hogy az nukleáris fegyverkísérletben vagy atomerőműben történik, kb. 300-féle hasadvány keletkezik közel azonos összetételben. A hasadványok között sok radioaktív izotópot találunk. Mivel a hasadványokban a neutronok száma túl sok a protonok számához képest, ezek az izotópok negatív béta-bomlással bomlanak, amelyet gyakran gamma-sugárzás kibocsátása kísér. Az ^{235}U hasadása során felszabaduló 200 MeV energiából kb. 14 MeV, azaz a teljes felszabaduló energia mintegy 7 %-a ezeknek a béta- ill. gamma-sugárzó izotópoknak az energiájaként van jelen, és csak időben elhúzódva, a radioaktív bomlások során jelenik meg.

Az 1. ábrán a periódusos rendszerben mutatjuk be azokat az elemeket, amelyeknek a nukleáris erőművekben radioaktív izotópjai keletkeznek. Látható, hogy ötven olyan elem van, amely a radioaktív hulladékokban előfordul. Ezek az elemek, illetve radioaktív izotópjai természetesen nem önmagukban vannak jelen a hulladékban, hanem inaktív szerkezeti, technológiai anyagokkal, munkaeszközökkel (fém alkatrészek, cellulóz- és szénhidrogén alapú szerves anyagok, stb.) együtt. A nukleáris hulladék kémiai összetétele tehát meglehetősen bonyolult.

1. Ábra. Atomreaktorokban keletkező radioaktív izotópok: sötétszürke – hasadási termékek, világosszürke – transzurán elemek, közép szürke – a szerkezeti anyagokból és a környezetből keletkező radioaktív izotópok

A nukleáris hulladékokat halmazállapotuk szerint is megkülönböztetjük. A fűtőelemekben levő urán-dioxidot az atomreaktorokban tokozott formában helyezik el, amely elvileg hermetikusan zár. Reális esetben azonban a burkolat mindig tartalmaz mikro- és makro-repedéseket, amelyeken keresztül a gáz halmazállapotú hasadási termékek kiszökhetnek. A gáz halmazállapotú hasadványok egy része (^{85}Kr -, ^{133}Xe -, ^{135}Xe -izotópok) az atmoszférába kerül. A gáz halmazállapotú jódot illetve jódvegyületeket aktív szénrel szűrik. A különböző felezési idejű jódizotópok relatív aktivitása felvilágosítással szolgál a burkolat mikro- és makro-repedéseiről. A gáz halmazállapotú hasadványokon kívül a szerkezeti anyagok és a környezet magreakcióival keletkező trícium és ^{14}C szintén kikerül az atmoszférába. A kikerülő radioaktivitást kiegészítve kibocsátással, égetéssel, ill. kondenzációval csökkentik. Szabályos üzemmenet mellett a környezetbe csak ezek a radionuklidok kerülnek.

Ha az atomreaktorok moderátora és/vagy hűtőközege víz vagy nehézvíz, akkor abba a fűtőelemek burkolatának repedésein keresztül vízben oldódó hasadási termékek (pl. ^{137}Cs -, ^{134}Cs -, stroncium- és jódizotópok ionjai) kerülnek. Ezért a vizet ioncserével folyamatosan tisztítják.

A radioaktív hulladékokat aktivitásuk alapján osztályozzák, országonként némileg eltérő módon. Az alapvető csoportok a következők:

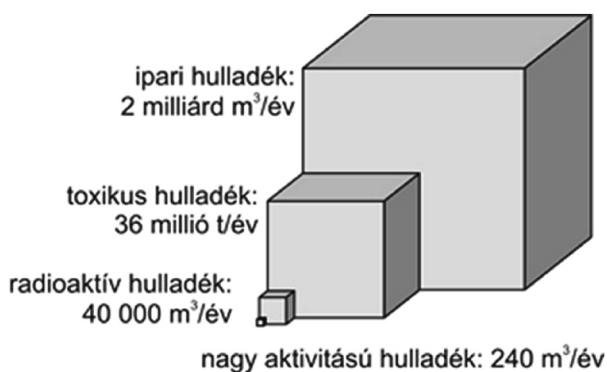
- Kis aktivitású hulladékok: ide tartoznak például a radioaktív munkahelyeken keletkezett hulladékok (szennyezett eszközök, munkaruhák, laboratóriumi edények, stb.).

- Közepes aktivitású hulladékok, amelyek nagyobb aktivitásuk miatt már gyakran sugárvédelmet igényelnek. Az atomreaktorokban víztisztításra használt ioncserélő gyanták, szűrők, iszapok, egyéb technológiai hulladékok sorolhatók ide. Normális működési körülmények között ezek a hulladékok hasadványokat, a szerkezeti anyagokból és a környezetből keletkező radioaktív izotópokat tartalmaznak. A transzurán elemek koncentrációja kicsi.

A kis és közepes aktivitású hulladékokat gyakran együtt kezelik.

- Nagy aktivitású hulladékok: az atomreaktorok belsejében keletkeznek, ami gyakorlatilag a kiégett fűtőelemeket jelenti. Ezen kívül a reprocesszáló üzemek szintén termelnek nagy aktivitású hulladékot. Ezen hulladékok radioaktivitása és hőtermelése nagy, ezért sugárvédelmet és hűtést igényelnek. A hűtést levegővel vagy vízzel telt medencékben való tárolással érik el. A nagy aktivitású hulladékokat kb. 50 évig ilyen körülmények között tárolják.

A nukleáris hulladékok mennyiségét az egyéb ipari hulladékokkal összehasonlítva a 2. ábrán mutatjuk be. A kockák mérete a keletkezett hulladék térfogatával arányos, így az ábra jól kifejezi, hogy a nukleáris energiatermelés hulladéktermelése kicsi.



2. Ábra. Az Európai Unióban keletkező hulladékok éves mennyisége (forrás: <http://www.matud.iif.hu/07jan/07.html>)

4.2. Nukleáris hulladékok kezelése, elhelyezése³

4.2.1. Kis és közepes aktivitású hulladékok kezelése és tárolása

A kis és közepes aktivitású hulladékokat föld alatti tárolókban helyezik el. Ezeknek a tárolóknak biztosítaniuk kell, hogy a radioaktív hulladék százezer éven keresztül ne érintkezessen a bioszférával. Ehhez olyan geológiai képződményeket választanak, melyekben a vízben jól oldódó anyagok millió éveken keresztül akkumulálódtak. Ilyenek a sóbányák, az agyagkőzetek, a gránit, a tufa. A földtani képződmények belsejében mérnöki gátakat is kialakítanak. A nukleáris hulladékot rozsdamentes acél vagy vasbeton konténerekbe teszik, amelyeket a mérnöki gátrendszer belsejében helyeznek el. Csak szilárd hulladékot tárolnak, a folyékony hulladékokat cementtel vagy bitumennel szilárdítják. A konténerek közötti réseket szintén cementtel töltik ki. A mérnöki és a természetes földtani gátaknak külön-külön is biztosítaniuk kell a százezer éves izolációt a bioszférától.

A kis és közepes aktivitású radioaktív hulladék közel 100 %-ban harminc évnél rövidebb felezési idejű ¹³⁷Cs- és ⁹⁰Sr-izotópot tartalmaz. A százezer év így több mint 3000 felezési időt jelent. Ez szakmailag értelmezhetetlen és indokolatlan. A hosszú időt a nukleáris energiatermeléssel kapcsolatos társadalmi nyomás kényszerítette ki.

A hulladéklerakók helyének kiválasztásánál sok szempontot figyelembe kell venni. Ezek például a földtani környezet hidrológiai tulajdonságai, a mérnöki gátrendszer korróziója és eróziója, a radionuklidok kimosódása és migrációja a földtani környezetben. Ezen túlmenően a mikrobiológiai aktivitást, a radiolízis hatásait szintén számításba kell venni.

A kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok főleg a nukleáris energiatermelés, kisebb mennyiségben az izotóplaboratóriumok technológiai hulladékait (ruházat, papír, fa, ioncserélő gyanták, műanyagok, szennyezett eszközök, berendezések, stb.) tartalmazzák. Ezeknek az anyagoknak a korróziója és mikrobiológiai degradációja során gáz halmazállapotú anyagok szabadulnak fel. A korrózió hidrogéngázt termel, a mikrobiológiai tevékenység pedig a redox-viszonyoktól függően szén-dioxidra vagy metánná alakítja át a hulladékban levő szerves anyagokat (ruházat, papír, fa, ioncserélő gyanták, műanyagok, stb.). A szén-dioxid képződése kisebb jelentőségű, mivel a föld alatti tárolókban az anaerób körülmények dominálnak. A

gázfejlődésnek kedvezőtlen hatásai lehetnek a tárolás során. A növekvő nyomás a környezetbe nyomhatja a radioaktív gázokat és oldatokat. A cementezett környezetben azonban az oldatok pH-ja 12 fölött van, ami egyaránt gátolja a konténerek korrózióját és a mikrobiológiai aktivitást, ezzel csökkentve a gázfejlődés ütemét.

A víz radiolízise szintén gáztermeléssel jár, ennek mértéke azonban a kis és közepes aktivitású hulladékok esetén elhanyagolható.

4.2.2. Nagy aktivitású hulladékok kezelése és tárolása

Amint azt már említettük, a nagy aktivitású radioaktív hulladékot, nevezetesen a kiegészített fűtőelemeket sugárvédelem és hűtés mellett 50 évig átmeneti tárolókban helyezik el, majd ezután kerülhetnek végleges föld alatti tárolóhelyre. A kiegészített fűtőelemek hasadványokat és transzurán elemeket tartalmaznak. A végleges tárolás előtt a fűtőelemeket különböző módon kezelhetik, és egyre inkább másodlagos nyersanyagként tekintik, mivel az energiatermeléshez szükséges ²³⁵U-tartalma nagyobb, mint a természetes uránnak, valamint további hasadó anyagot (plutónium) is tartalmaz. Ezeknek a kezeléseknak a célja

- a béta- és gamma-sugárzás energiájának hasznosítása, tehát további energia termelése
- újabb hasadóanyag (pl. plutónium) kinyerése
- a nagy aktivitású hulladékok tárolásával összefüggő veszélyforrások és a költségek csökkentése
- a nukleáris energiatermelés teljes fűtőanyagciklusának költségcsökkentése
- értékes melléktermékek (pl. hasadványok) kinyerése, amelyeket egyéb területeken (pl. a nukleáris medicinában) használhatunk fel.

A nagy aktivitású nukleáris hulladékok kezelésének egyik lehetősége a reprocessálás. Ez olyan kémiai eljárás, melynek során a kiegészített fűtőelemeket feloldják, majd a hasadványokat, az uránt és a transzurán elemeket elkülönítik. Ilyen módon a nagy aktivitású hulladék kb. 97 % újra felhasználható. A reprocessálás során közvetlenül csak a gáz halmazállapotú radionuklidok kerülnek a környezetbe, hasonlóan az atomreaktorok üzemszerű kibocsátásához.

Az újrahasonosítás mellett a reprocessálás során lehetőség van arra is, hogy a rövidebb és a hosszabb felezési idejű izotópokat elkülönítsék. Ezzel a nagy aktivitású hulladék mennyisége és aktivitása egyaránt jelentősen csökkenthető, ami kevesebb tárolókapacitást igényel.

A nagy aktivitású hulladék kezelésének másik lehetősége lehet a kiegészített fűtőelemekben levő hasadványok átalakítása rövidebb felezési idejű izotóppokká. Az eljárást transzmutációnak nevezik. Ehhez a hasadványokat sóoldatokban oldják, majd nagy neutronfluxussal bombázzák. A neutronokat spallációs reakcióval, azaz nehéz elemek (Pb, Bi, Hg) nagy energiájú protonokkal (>800MeV) történő bombázásával állítják elő. A nagy energiájú protonokat lineáris gyorsítóknak termelik. A neutronok reagálnak a hasadványok atommagjaival; hasadási, neutronbefogási magreakciók történnek, amelyeket béta-bomlások követnek. Végeredményben rövidebb felezési idejű, esetleg stabil izotópok keletkeznek. A folyamat energia-felszabadulással jár; a termelődő energiának kb. 20 % szükséges a protonokat előállító lineáris gyorsító működtetéséhez, a többi egyéb

célokra hasznosítható, így a nukleáris energiatermelés gazdaságosabbá tehető. A kiégett fűtőelemek transzmutációja azonban még csak kísérleti stádiumban van, valószínűleg még hosszú időt kell várnunk a megvalósításra.

A kiégett fűtőelemek kezelésétől függetlenül, több-kevesebb nagy aktivitású nukleáris hulladék mindig keletkezik, amelyet végleges tárolóban kell elhelyezni. Egyetlen reális lehetőségnek a föld alatti tárolás tűnik, jelenleg azonban még egyetlen olyan föld alatti tároló sem üzemel, amelyben nagy aktivitású radioaktív hulladékot helyeztek volna el. Több országban folynak kutatások ilyen tároló építése céljából. Az első tároló elkészülése 2025 körül várható. Az elképzelések szerint a nagy aktivitású hulladékot rozsdamentes acél konténerekben helyeznék el, amelyet bentonit agyagkőzet (mérnöki gát) és alkalmas természetes földtani közeg venne körül.

4.3. A földtani képződmények és a radioaktív izotópok kölcsönhatásai

A nukleáris hulladék föld alatti tárolása esetén mindig figyelembe veszik annak lehetőségét, hogy az izotópok a földtani környezetbe kerülhetnek és ott migrálhatnak. A migrációt alapvetően befolyásolják a hidrológiai folyamatok: a víz mozgási sebességét tekintik a vízzeloldható radionuklidok maximális migrációsebességének. Ez a sebesség azonban jelentősen csökken, ha a radionuklid szorbeálódhat a földtani képződmények, kőzetek és talajok felületén. A szorpciót a nuklidok kémiai formái, főként azok töltése befolyásolja. A földtani képződményekre jellemző körülmények között mutatót kémiai formáik alapján a radionuklidokat a következőképpen csoportosíthatjuk:

- Kationok (pl. $^{134,137}\text{Cs}^+$, $^{41}\text{Ca}^{2+}$, $^{90}\text{Sr}^{2+}$, $^{54}\text{Mn}^{2+}$, $^{55}\text{Fe}^{3+}$, $^{58,60}\text{Co}^{2+}$, $^{59,63}\text{Ni}^{2+}$)
- urán és transzurán elemek (U-, Np-, Pu-, Am-izotópok), alapvetően (komplex) kationok
- anionok (pl. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -izotópok, mint pertechnetátionok (TcO_4^-), ^{14}C -izotóp mint karbonát (CO_3^{2-}), $^{36}\text{Cl}^-$, $^{129}\text{I}^-$)
- semleges specicszek (pl. ^3H -izotóp mint víz, fém $^{110\text{m}}\text{Ag}$).

A migráció a tároló kőzetben történik: agyagkőzetben (főleg bentonitban), gránitban, oxidokban és egyéb ásványokban (karbonátokban, szulfátokban, stb.). Mivel ezeknek a kőzeteknek és a talajoknak a felületi töltése földtani körülmények között (pH, redoxviszonyok) jellemzően negatív, a kationok általában megkötődnek azokon, az anionok viszont nem. A céziumion ezen kívül beépülhet a kristályrácsban levő üregekbe, tehát megkötődése irreverzibilis. A többi kation reverzibilisen kötődik meg. Az átmenetifémek és a transzurán elemek kationjainak szorpcióját hidrolízisük befolyásolja. A transzurán elemek gyakran képeznek kolloidokat. A kationok, a cézium kivételével, komplexeket is képezhetnek, ami növeli a migráció sebességét. Ezen kívül a kicsapódási, redoxfolyamatok, valamint a mikrobiológiai aktivitás is befolyásolja a kémiai formákat, következőképpen a szorpció mértékét és a migráció sebességét.

A semleges specicszek migrációja függ azok kémiai tulajdonságaitól. A semleges, tríciumot tartalmazó vízmolekula nyilvánvalóan együtt mozog a közegben levő vízzel (az izotópeffektus elhanyagolható).

5. A környezeti radioaktivitás összetevői

Amint azt a korábbiakban tárgyaltuk, a környezeti radioaktivitást a természetes és mesterséges források összessége adja. A természetes források okozzák azt a sugárzási hátteret, amely az evolúció során mindig jelen volt, az emberiség kialakulása ennek jelenlétében történt, ehhez nyilvánvalóan alkalmazkodtunk. Minden egyéb sugárterhelést ehhez az értékhez viszonyítva értékelhetünk korrekten. A környezeti sugárzás összetevőt, dózist az 1. táblázatban foglaljuk össze.

Az 1. táblázatból látható, hogy a természetes háttérdózszt a kozmikus sugárzás és a természetes radionuklidok adják. Mindkét forrás külső sugárterheléssel hat az élő szervezetekre, illetve az anyagcsere révén a szervezetekbe került izotópok belső sugárterhelésként jelentkeznek.

Ehhez járul az a természetes dózis, amelynek megjelenése az ember életterében antropogén tevékenységhez köthető. Például az ásványi nyersanyagok (szén, földgáz, foszfátok) kibányászása során felszínre kerülő radioaktivitás természetes jellegű, de sugárterhelést föld alatti állapotában nem, csak kibányászása után okoz.

1. táblázat: A környezeti háttérdózis átlagos értéke a Földön

Forrás	mSv/év		
	külső	belső	összes
Kozmikus sugárzás			
Töltött részecskék	0,28		0,38
Neutronok	0,10		
Kozmogén radionuklidok, pl. ^{14}C			
		0,015	0,015
Primordiális radionuklidok			
^{40}K	0,12	0,18	0,30
^{87}Rb		0,06	0,06
^{238}U és leányelemei	0,1	0,12	0,14
^{232}Th és leányelemei	0,14		
^{222}Rn és leányelemei		1,1	1,1
^{220}Rn és leányelemei		0,1	0,1
Természetes háttérdózis			
	0,74	1,58	2,36
Természetes, de emberi tevékenységhez kötött dózis			
Szénérőművek			1,8
Repülőutak			
Földgáz (^{222}Rn)			
Építőanyagok (^{222}Rn)			
Mesterséges			
Diagnosztikus orvosi besugárzások			0,45
Radioaktív hullás			0,04

Ugyancsak természetes eredetű a ^{222}Rn , amely építőanyagainkkal kerül a házak falába és a zárt terekben (házakban, de barlangokban is) megüledve növeli a sugárterhelést. Ehhez járul az a tény, hogy bomlástermékei szilárd halmazállapotúak, így a tüdőben lerakódva belső sugárterhelést okoznak. A repülőutakon a kozmikus sugárzás növeli meg a külső sugárterhelést. **A mesterséges radioaktivitástól, vagyis az atomfegyver-kísérletekből, a nukleáris energiatermelésből a környezetbe került izotópoktól származó járulék a természetes háttérsugárzásnak** (beleértve az antropogén tevékenységhez kötött járulékot is) **kb. 1 %-a. A radioaktív hulladékokkal kapcsolatos fejezetben bemutatott eljárásoknak mind az a célja, hogy ennek mértéke ne növekedjen.**

Összefoglalás

Bequerel 1896-ban fedezte fel, hogy bizonyos atomok spontán, minden külső behatás nélkül nagy energiájú részecskéket és elektromágneses sugárzást bocsátanak ki. Ezt a jelenséget hívjuk radioaktív bomlásnak, és ma már tudjuk, hogy az átalakulás során új atommagok keletkeznek. Felfedezése indította el az anyagszerkezeti kutatásokat, illetve számos gyakorlati alkalmazási lehetőséget nyújtott. A legjelentősebbek a nukleáris energiatermelés és a nukleáris medicina.

A természetes radioaktív izotópok az ^{238}U , ^{235}U és a ^{232}Th természetes bomlási sorainak tagjai, a Föld keletkezésével egyidős, hosszú felezési idejű ún. primordiális izotópok, illetve a levegőben levő atomok és a kozmikus sugárzás hatására folyamatosan keletkező ún. kozmogén radionuklidok. A mesterséges radioaktív izotópok előállításának elterjedéséig a természetes radionuklidokat számos kutatási és gyakorlati célra használták. Manapság az ólomizotópok aránya, héliumkoncentráció, az urán hasadási termékei, ^{210}Pb -izotóp aktivitása, $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$, $^{87}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$ izotóparányok alapján földtörténeti és ^{14}C aktivitása alapján történeti korokat határoznak meg. Ezen túl a rádiumizotópok (rádium-kvartett) aktivitásának mérését az óceánok keveredési folyamatainak vizsgálatában alkalmazzák. A radonizotópok aktivitása alapján légtömegek mozgását, hidrogeológiai folyamatokat vizsgálnak.

Mesterséges radioaktív izotópok legnagyobb mennyiségben az atomfegyver-kísérletek során kerültek a környezetbe. Az atomenergia ipar (atomerőművek, fűtőelemek előállítása és kiégett fűtőelemek feldolgozása) szintén termel radioaktív

izotópokat, melyek közül a gáz halmazállapotúak egy része kerül kibocsátásra. A szilárd állapotú nukleáris hulladékokat aktivitásuk szerint osztályozzák. A kis és közepes aktivitású hulladékokat föld alatti tárolókban helyezik el. A tároló környezetének természetes földtani gátja, illetve a kialakított mérnöki gátak biztosítják, hogy a hulladék lebomlásáig ne kerüljön kapcsolatba a bioszférával. A nagy aktivitású hulladékot, azaz a kiégett fűtőelemeket egyre inkább másodlagos nyersanyagnak tekintik. Így a végleges tárolás előtt feldolgozhatják, reprocessálhatják, így csak ennek hulladéka kerülne föld alatti tárolóba. Az első tároló elkészülése 2025 körül várható.

A környezeti radioaktív dózis tehát a természetes és mesterséges forrásokból származik, melyek aránya kb. 100:1. A természetes forrásokhoz az evolúció során az élő szervezetek adaptálódtak. A feladat a mesterséges források hozzájárulását továbbra is a jelenlegi kb. 1 %-os szinten tartani.

Köszönetnyilvánítás

A közlemény a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal – NKFIH 120265. számú pályázata, valamint a GINOP-2.3.2-15-2016-00008 számú projekt keretében, az Európai Unió támogatásával, az Európai Regionális Fejlesztési Alap társfinanszírozásával valósult meg.

Hivatkozások

1. Bequerel, H. *Comptes Rendus Acad. Sci. Paris* **1986** 122, 501-503.
2. Curie, M. *Comptes rendus Acad. Sci. Paris* **1898** 126, 1101-1103.
3. Kónya, J., Nagy, N.M., *Nuclear and Radiochemistry*, Elsevier, **2012.**, 2nd edition: **2018.**, ISBN: 9780128136447, ISBN: 9780128136430
4. Landis, J.D., Renshaw, C. E., Kaste, J. M. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **2016** 180, 109–125., <https://doi.org/10.1016/j.gca.2016.02.013>
5. Kullerud, K. 2003 Kullerud, K. **2003.** <http://ansatte.uit.no/kku000/webgeology/webgeology_files/english/rbsr.html> (letöltve 2017.01.03.)
6. Charette, M.A., Scholten, J.C. *Marine Chemistry* **2008** 109, 185–187., <https://doi.org/10.1016/j.marchem.2008.04.001>
7. Poncela, L.S.Q., Fernandez, C.S., Merino I.F., Jose I. Gutierrez Villanueva, J.L.G., and Diez, A.G. *Acta Geophysica* **2013** 61, 848-858., <https://doi.org/10.2478/s11600-013-0119-z>

Environmental radioactivity

In the end of the 19th century, the discoveries signed by Lavoisier, Dalton and Avogadro, namely the law of conservation of mass, the atomic theory and the definition of mole as a unit of the chemical quantity, led to a plausible model of matter. This model was built on the principles of Dalton's atomic theory, the basic laws of thermodynamics and the term of mole. This model of the matter has been challenged when it was discovered that the same element can have radioactive and stable forms. In 1896, Becquerel discovered that some atoms spontaneously irradiate particles and electromagnetic radiation. This phenomenon is called radioactive decay. Nowadays, it is known that the radioactive decay includes the transformation of atomic nuclei. The discovery of radioactivity initiated the studies of the structure of material, and provided many practical applications. Nuclear energy production and medicine are mentioned as most significant.

It is important to note that Becquerel discovered a natural phenomenon, being present during the whole life of the earth and evolution. Natural radionuclides are present in all geological spheres, namely in atmosphere, hydrosphere, and lithosphere, and even in biosphere.

Natural radioactive isotopes are the members of the natural decay series of ^{238}U , ^{235}U , and ^{232}Th , their long-lived members including radium, radon, lead, bismuth, polonium isotopes; primordial isotopes with the same age as Earth such as ^{40}K , ^{50}V , ^{87}Rb , and the cosmogenic radionuclides continuously producing in the nuclear reactions of the components in the air with cosmic radiation such as ^3H , $^{7,10}\text{B}$ and ^{14}C . Before the wide-spread production of artificial radionuclides, these natural radioactive isotopes were applied for many scientific and practical purposes. Recently, the natural radioactive isotopes are used for the determination of geological and historical ages, using the radioactive decay law, that is the kinetics of decay. The most important methods for geological aging are based on the ratio of lead isotopes produced from the different isotopes of uranium, helium concentration formed from alpha particles during the decomposition of the members of the natural decay series, fission products of uranium, activity of ^{210}Pb , the member of ^{238}U series. In addition, primordial nuclides, namely the ratios of $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$, $^{87}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$ as well as the cosmogenic radionuclide, namely the activity of ^{14}C , respectively, are used for the determination of geologic and historic ages. Moreover, the mixing processes of the oceans are studied using the activity of radium isotopes (radium quartet). Air mass trajectories and hydrogeological processes are examined by radon isotopes.

Artificial radioactive isotopes were emitted into the environment in the nuclear weapon tests. The nuclear energy industry (power plants, the production and reprocessing of fuel) also produces radioactive isotopes.

The most significant nuclear reactions are: the fission reaction (n,f) of ^{235}U , the fuel of nuclear reactors; (n,) of ^{238}U resulting in transuranium elements (neptunium, plutonium, americium and some curium); and the (n,) reactions of structural material and environment of nuclear reactors resulting in many radioactive isotopes (e.g., ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{41}Ar , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{65}Zn , ^{110}Ag).

A part of the gaseous radioactive products are emitted into the air. The solid nuclear wastes are classified on the basis of activities. Low and intermediate level nuclear waste is deposited in geological disposals. The natural geological barrier surrounding the disposals and engineering barriers isolate the nuclear waste from the biosphere as long as the total decomposition. The geological disposals are selected on the basis of the geological and hydrological properties, the corrosion and erosion of the engineering barrier system, the leaching and migration of radionuclides under geological conditions, the effects of radiolysis and microbiological activity.

The high activity nuclear waste that is the spent fuel is considered as secondary raw material. Before the final disposal, it can be reprocessed and only the waste of this process is deposited in geological disposal. The first disposal will be expected to operate in 2025.

The aims of treatment of spent fuel elements before the final disposal are: to utilize the energy of the beta and gamma decay; to produce additional fuel material (e.g. plutonium); to decrease risk and cost associated with the storage of the high-level nuclear waste; to decrease the cost of the fuel cycle of the nuclear energy production; to gain valuable by-products, e.g. fission products which can be used in other fields.

From environmental points of view, the migration of radionuclides in lithosphere has a significant role. The migration rate is highly influenced by the interaction of radionuclides and the geological formations (minerals, rocks, soils). The hydrological properties of the environment and the charge of the radionuclides and their chemical species are the dominant factors.

The environmental radioactive dose consists of the natural and artificial components, the ratio of which is cca. 100:1. Living organisms were adapted to the natural radioactivity during evolution. The task is to keep the recent 1 % of the artificial environmental radioactivity.