

# MÓDSZERFEJLESZTÉS ÉS ALKALMAZÁSA A PIHENTETŐ MEDENECÉK VIZÉBEN OLDOTT SZERVETLEN C-14 MÉRÉSÉRE

**Molnár M.<sup>1</sup>, Bihari Á.<sup>1</sup>, Mogyorósi M.<sup>1</sup>, Veres M.<sup>1</sup>, Pintér T.<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> HEKAL, MTA ATOMKI – Isotoptech Zrt,  
H-4026 Debrecen, Bem tér 18/c, mmol@atomki.hu

<sup>2</sup>Paksi Atomerőmű Zrt, Paks

XL. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam  
Hajdúszoboszló, 2015. április 21-23.

# $^{14}\text{C}$ és a nukleáris létesítmények

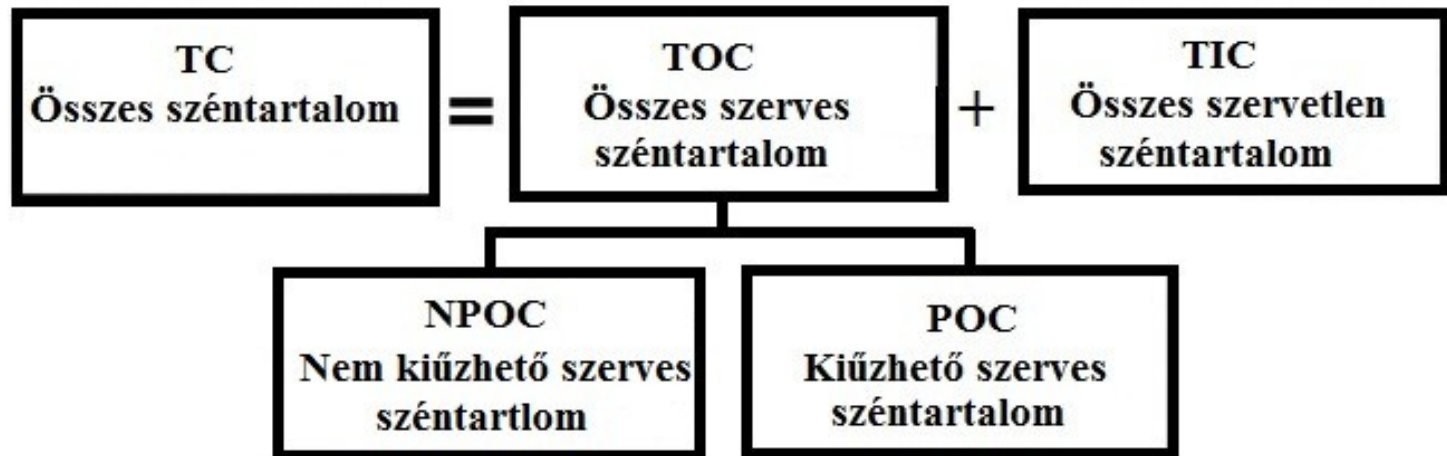


# $^{14}\text{C}$ és a nukleáris létesítmények

- A globálisan, atomreaktorok által termelt radiokarbon mennyisége ( $\sim 1,1 \cdot 10^{15}$  Bq/év) **összemérhető a természetes termelődési szinttel** ( $\sim 1,5 \cdot 10^{15}$  Bq/év)
- A teljes mennyiségnek kb. **10%-a légnemű kibocsátás formájában közvetlenül** vagy közvetve kijut a környezetbe, és a környezeti/biológiai minták  $^{14}\text{C}$  szintjének növekedését okoz(hat)ja.
- A **Paksi AE** esetében a légköri kibocsátásból eredő **lakossági sugárterhelés járulék 50%-a** a  $^{14}\text{C}$ -től származik.

*Bihari Á., Molnár M., Pintér T., Mogyorósi M., Szűcs Z., Veres M.  
A Paksi Atomerőmű primerkörében oldott  $^{14}\text{C}$  nyomonkövetése a C30-  
as konténerig I.: Szervetlen frakció. (LSC-s módszerrel)  
LXXXVIII. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam. Hajdúszoboszló,  
2013. április 23-25.*

# $^{14}\text{C}$ kémiai formái PWR rendszerekben



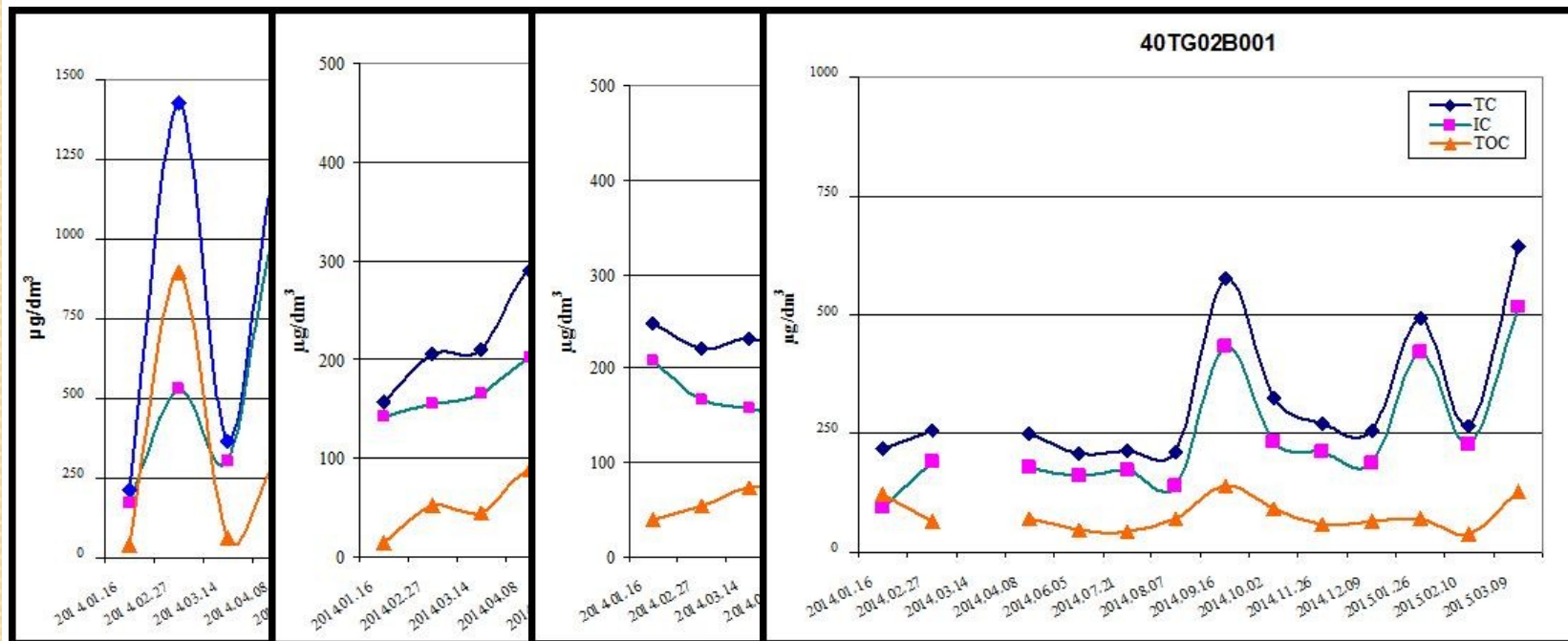
- A fölös hidrogéngáz jelenléte miatt a redukált (szerves) forma az uralkodó.
- A szervesetlen frakcióba beletartozik a CO és a CO<sub>2</sub> is, melyek az illékony szerves vegyületekkel együtt gyorsan távoznak a primerköri hűtőközegből.
- Paks (4 blokk összesen): ~ 30 GBq/év CO<sub>2</sub> és 510 GBq/év C<sub>n</sub>H<sub>m</sub> az utóbbi 5 év átlagában

*Bihari Á. et al (2013) minden blokkon 1-1 mérés alapján: DIC  $^{14}\text{C}$  akt. konc. Primerköri víz: ~10 Bq/L; Pih.med.víz: 1-5 Bq/L\*; C30-as: 1-2 Bq/L  
\*: a pihmed esetén nagy különbségek voltak a négy blokk között*

# Pihentető medencék vizének széntartalom mérése

Shimadzu TOC-V<sub>CPN</sub> készülék  
(Paksi Atomerőmű)  
TC (katalitikus oxidációból)  
TC (savas feltárásból)

PAE pihentető medence vizére:  
DIC: általában 100-200  $\mu\text{g}/\text{dm}^3$



# $^{14}\text{C}$ minta előkészítés: az oldott szerves szénformák (DIC) kinyerése és előkészítése

## PAE helyszínen: lecsapás és stabilizálás

- 100 ml minta (primerköri vagy pihentető medence víz)
- pH > 12-re beállítás, lúgosítás
- Karbonát hordozó ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ )
- Lecsapás ( $\text{BaCl}_2$  oldattal)

## Később laborban: tisztítás, mosás

- Képződött  $\text{BaCO}_3$  csapadék (0,4 g) ülepitése, kimosása, többszöri dekantálása, szárítása

## HEKAL-ban: $^{14}\text{C}$ feltárás és mérés

- Folyadék szcintillációval (LSC)
- Gáztöltésű proporcionális számlálóval (GPC)
- Gyorsítós tömegspektrométerrel (AMS) **nem radiometria!**

# Mintaelőkészítés: a $\text{BaCO}_3$ csapadék feltárása LSC-s $^{14}\text{C}$ méréshez



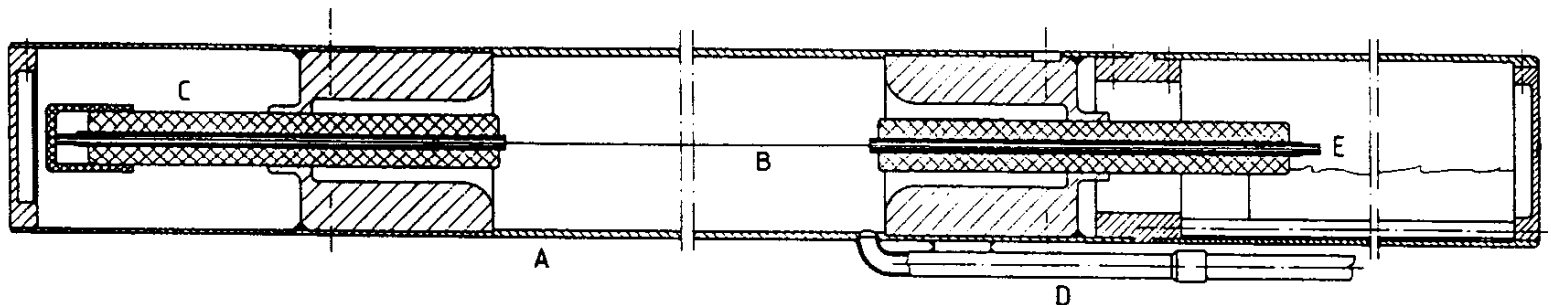
- $\text{BaCO}_3$ -ból  $\text{CO}_2$  felszabadítása vákuumampullában 100%-os foszforsavval
- Keletkező  $\text{CO}_2$  elnyeletése CarboSorb-ban
- PermaFluor szcint. koktél, LSC mérés (TriCarb3170).
- KH közelében...



# Mintaelőkészítés: a $\text{BaCO}_3$ csapadék feltárása GPC-s $^{14}\text{C}$ méréshez

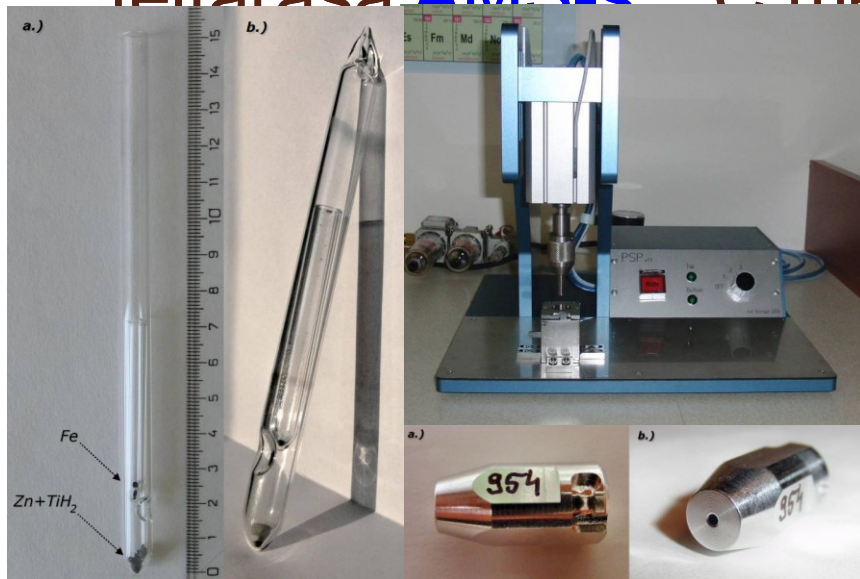


- $\text{BaCO}_3$ -ból  $\text{CO}_2$  felszabadítása vákuumampullában 100%-os foszforsavval
- Keletkező  $\text{CO}_2$  hígítása inaktív gázzal (x1000)
- Gázként betöltve a számlálócsőbe (2 minta/nap)
- KH közelében...

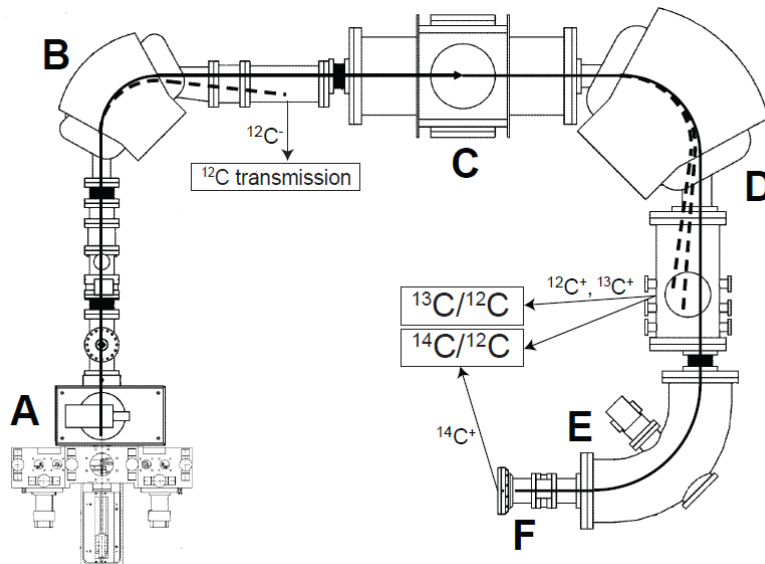




# Mintaelőkészítés: a $\text{BaCO}_3$ csapadék feltárása AMS-s $^{14}\text{C}$ méréshez



- $\text{BaCO}_3$ -ból  $\text{CO}_2$  felszabadítása vákuumampullában 100%-os foszforsavval
- Keletkező  $\text{CO}_2$  grafitizálása
- Grafitként betöltve mérésre
- 16 (32) db minta/nap
- A „Felső” (!) méréshatár közelében...

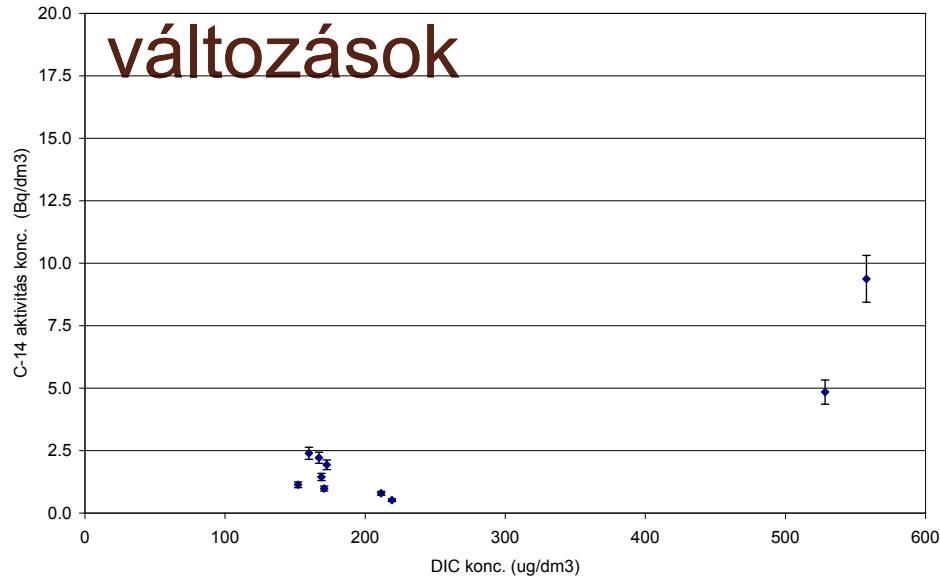


# Mintaelőkészítés: a BaCO<sub>3</sub> csapadék feltárása AMS-s <sup>14</sup>C méréshez

AMS C-14 sample code	sample code	<sup>14</sup> C counts	+/-	<sup>12</sup> C (μA)	<sup>14</sup> C/ <sup>12</sup> C ( <b>10<sup>-12</sup></b> )	+ - (%)
DeA-3441.1.416	<b>ZCS-Blank, 2014</b>	367	19	11.2	<b>0.0036</b>	5.39
DeA-3441.1.417	<b>ZCS-Blank, 2014</b>	388	20	11.1	<b>0.0038</b>	5.23
DeA-3441.1.418	<b>ZCS-Blank, 2014</b>	444	21	11.5	<b>0.0053</b>	4.75
DeA-3442.1.411	<b>ZCS-Oxa2, 2014</b>	153,951	392	12.3	<b>1.3783</b>	0.25
DeA-3442.1.412	<b>ZCS-Oxa2, 2014</b>	147,984	385	11.8	<b>1.3810</b>	0.26
DeA-3442.1.413	<b>ZCS-Oxa2, 2014</b>	117,874	343	11.7	<b>1.3819</b>	0.29
DeA-5689	<b>10TG 2014. dec.</b>	3,330,518	1,825	13.2	<b>27.9989</b>	0.05
DeA-5690	<b>20TG 2014. dec.</b>	1,293,794	1,137	12.0	<b>11.9047</b>	0.09
DeA-5691	<b>30TG 2014. dec.</b>	10,691,185	3,270	12.7	<b>107.2582</b>	0.03
DeA-5692	<b>40TG 2014. dec.</b>	1,423,176	1,193	13.3	<b>11.8394</b>	0.08
DeA-5693	<b>10TG 2014. aug.</b>	3,507,708	1,873	12.2	<b>32.1184</b>	0.05
DeA-5694	<b>10TG 2014. nov.</b>	1,882,406	1,372	12.7	<b>16.3759</b>	0.07
DeA-5695	<b>Prep. Blank</b>	58,323	242	13.2	<b>0.4855</b>	0.41
DeA-5696	<b>10TG 2014. okt.</b>	16,223,809	4,028	13.0	<b>207.5184</b>	0.03
DeA-5697	<b>20TG 2014. okt.</b>	3,707,801	1,926	12.5	<b>41.5093</b>	0.05
DeA-5698	<b>30TG 2014. okt.</b>	23,304,170	4,827	15.2	<b>266.4251</b>	0.02
DeA-5699	<b>40TG 2014. okt.</b>	893,636	945	13.2	<b>9.3367</b>	0.11
DeA-5700	<b>20TG 2014. nov.</b>	2,317,635	1,522	15.5	<b>20.8479</b>	0.07
DeA-5701	<b>30TG 2014. nov.</b>	12,074,144	3,475	11.8	<b>166.8467</b>	0.03
DeA-5702	<b>40TG 2014. nov.</b>	4,086,274	2,021	14.0	<b>43.1095</b>	0.05

# Pihentető medence oldott $^{14}\text{C}$ -tartalom

## változások



## 1. blokk

Pihentető medence vízében:

Általában:

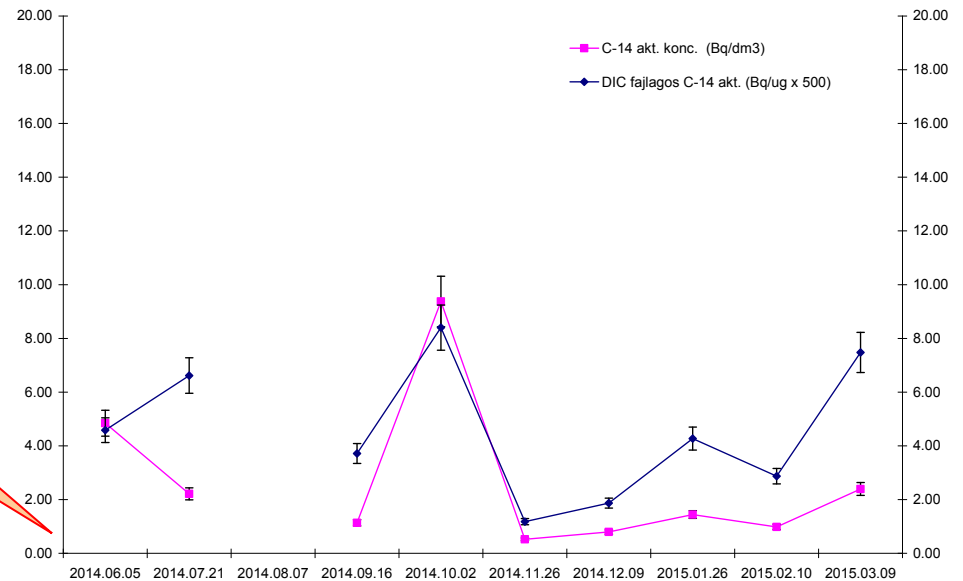
DIC: 150-200 ug/dm<sup>3</sup>

$^{14}\text{C}$ : < 3 Bq/dm<sup>3</sup>

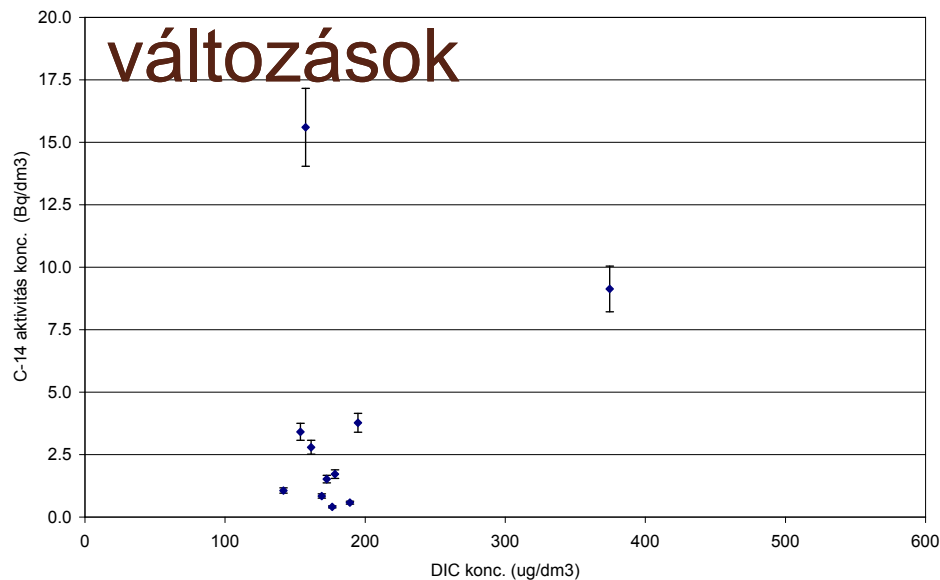
$^{14}\text{C}_{\text{max}}$ : 10 Bq/dm<sup>3</sup>

1. blokk pihmed.

Az 1. blokk leállása  
2014.03.29-én indult



# Pihentető medence oldott $^{14}\text{C}$ -tartalom



## 2. blokk

Pihentető medence vizében:

Általában:

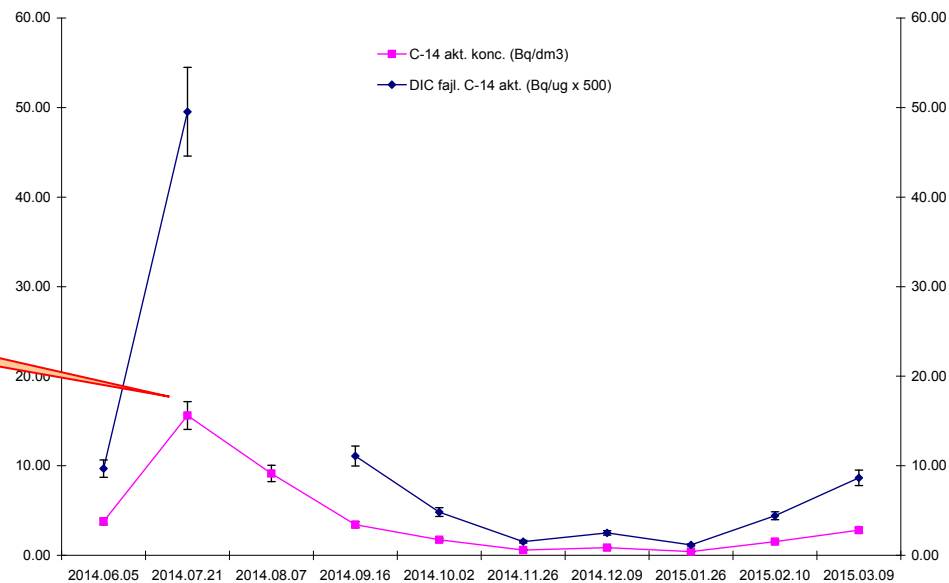
DIC: 150-200 ug/dm<sup>3</sup>

$^{14}\text{C}$ : < 5 Bq/dm<sup>3</sup>

$^{14}\text{C}_{\text{max}}$ : 16 Bq/dm<sup>3</sup>

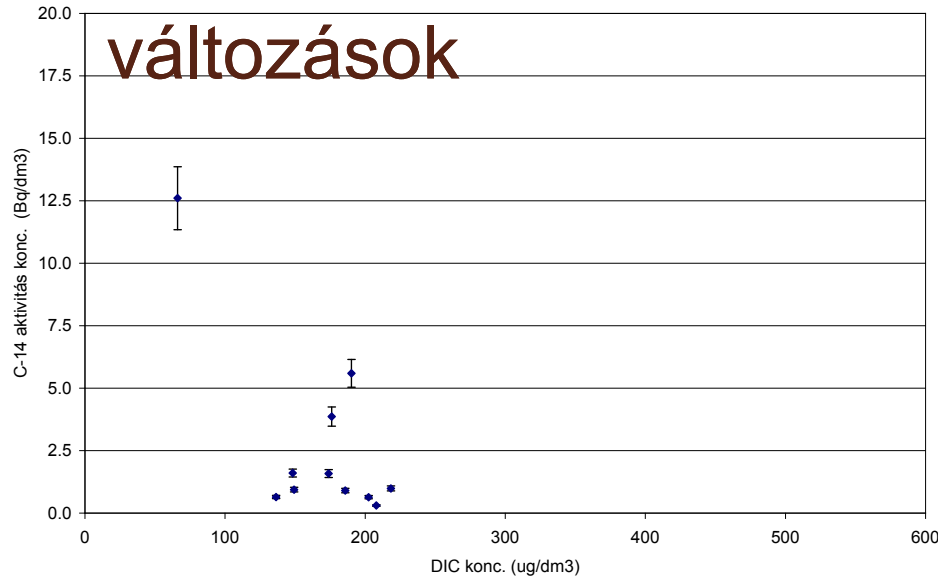
2. blokk pihmed.

A 2. blokk leállása  
2014.07.19-én indult



# Pihentető medence oldott $^{14}\text{C}$ -tartalom

## változások



### 3. blokk

Pihentető medence vizében:

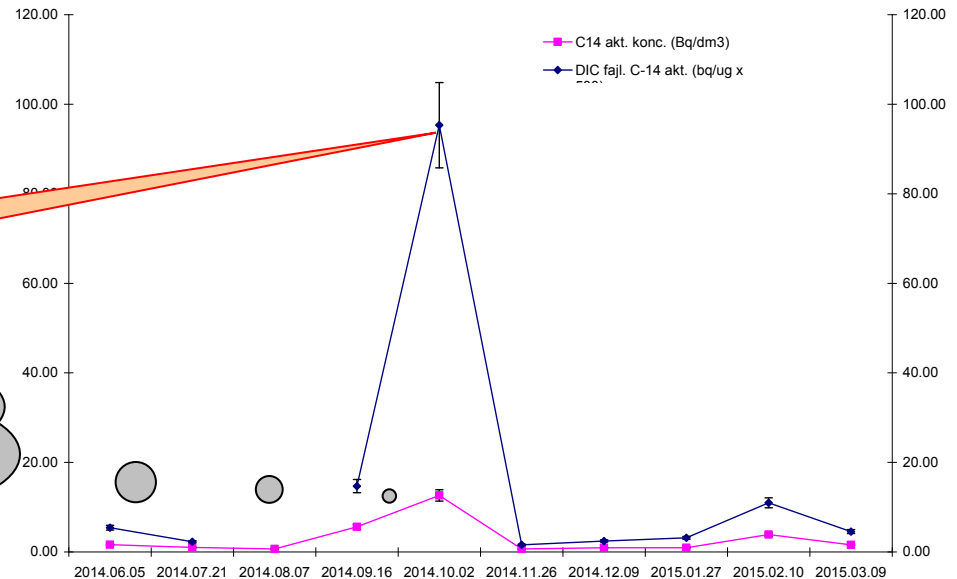
Általában:

DIC: 150-200 ug/dm<sup>3</sup>

$^{14}\text{C}$ : < 5 Bq/dm<sup>3</sup>

$^{14}\text{C}_{\text{max}}$ : 14 Bq/dm<sup>3</sup>

3. blokk pihmed.

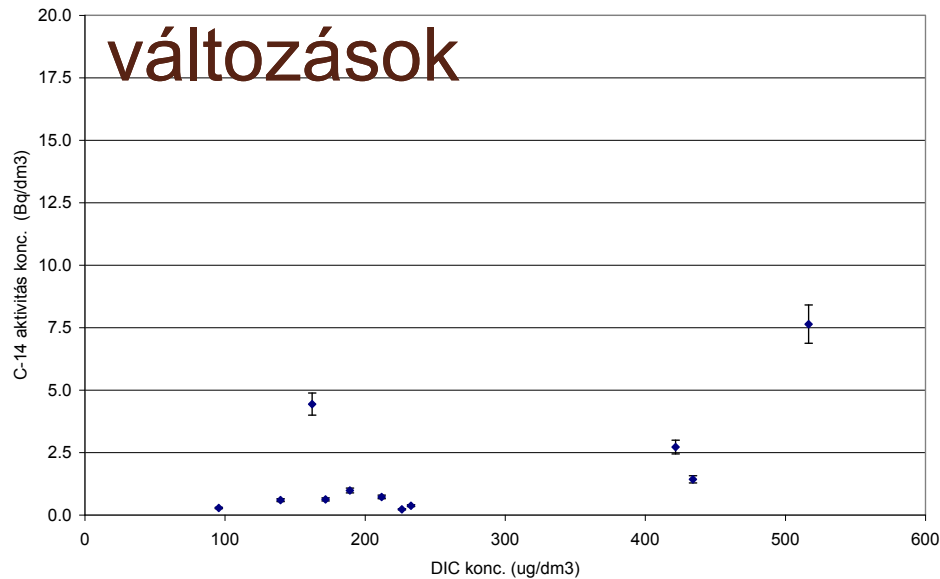


A 3. blokk leállása  
2014.10.04-én indult

A  $^{14}\text{C}$  mintavétel  
2 nappal korábbi...  
a DIC koncentráció alig,  
de benne a C-14 megnő

# Pihentető medence oldott $^{14}\text{C}$ -tartalom

## változások



## 4. blokk

Pihentető medence vízében:

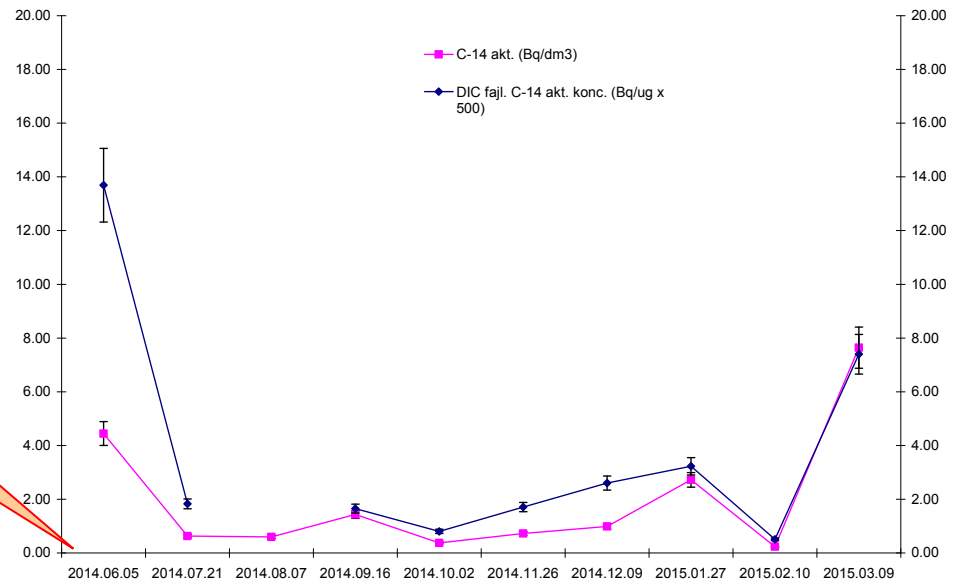
Általában:

DIC: 150-200 ug/dm<sup>3</sup>

$^{14}\text{C}$ : < 3 Bq/dm<sup>3</sup>

$^{14}\text{C}_{\text{max}}$ : 8 Bq/dm<sup>3</sup>

### 4. blokk pihmed



A 4. blokk leállása  
2014.05.03-án indult

# Pihentető medence oldott $^{14}\text{C}$ -tartalom változások

## összefoglalása

Új, gyorsító tömegspektrométeres (AMS)  $^{14}\text{C}$  eljárást dolgoztunk ki a technológiai rendszerek vizeinek DIC és akár DOC frakciók mérésére.

Az új módszer gyors és hatékony. A „radiokémiai” tisztaságra nem annyira érzékeny, mint az LSC-s vagy GPC-s módszerek.

A négy blokk pihentető medence vizében általában, egymáshoz hasonlóan az oldott DIC: 150-200  $\mu\text{g}/\text{dm}^3$  mozog, míg  $^{14}\text{C}$ :  $< 3-5 \text{ Bq}/\text{dm}^3$  alatt marad. A „természetes” C fajlagos aktivitásának  $10^5$ - $10^6$ -szorososa.

A legmagasabb  $^{14}\text{C}_{\text{max}}$ :  $< 20 \text{ Bq}/\text{dm}^3$  volt 2014-ben. Nem mindig a magas DIC koncentráció esetén van kiugróan magas C-14 tartalom.

A leállások idején a C-14 tartalom, s DIC fajlagos C-14 tartalma is megnő általában (természetesen).

Terveink: az oldott szerves (DOC) frakciót, és az illékony frakciókat is szeretnénk megmérni.

Az egyes technológiai folyamatokhoz tartozó, jellemző C-14 változási sémákat megérteni.



Köszönjük a  
figyelmet!

[www.radiocarbon.hu](http://www.radiocarbon.hu)