



A magyarországi ^{106}Ru mérési eredmények értékelése

Jakab Dorottya¹ (jakab.dora@energia.mta.hu), Endrődi Gáborné¹,
Kapitány Sándor², Kocsonya András¹, Pántya Annamária¹,
Pázmándi Tamás¹, Zagyvai Péter¹

¹Magyar Tudományos Akadémia Energiatudományi Kutatóközpont

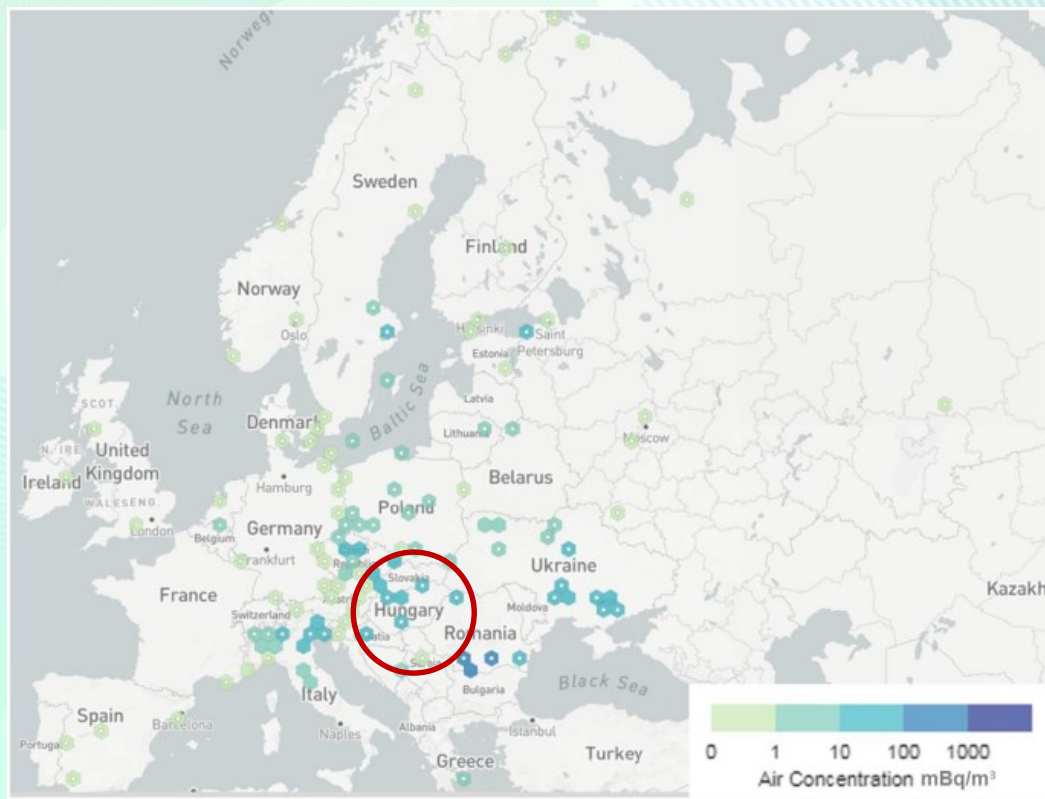
²Országos Atomenergia Hivatal

Bevezetés

Mesterséges eredetű ^{106}Ru detektálása Európában 2017. szeptember végén - október elején

Légköri ^{106}Ru aktivitáskoncentráció: $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ – mBq/m^3 nagyságrendben

^{106}Ru legutóbbi detektálása a környezetben, kontinentális skálán: Csernobili atomerőmű balesetet (1986) követően



Forrás: *Status of Measurements of Ru-106 in Europe*, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 13 October, 2017

Ruténium fizikai-kémiai tulajdonságai

- Természetes eredetű elem, a periódusos rendszer VIII. (platinafémek) csoportjába tartozik
- Jellemző vegyületek: oxidok, halogenidek egyidejűleg több oxidációs állapotban is előfordulhat

Izotópjai:

- 7 stabil izotóp (^{96}Ru , ^{98}Ru , ^{99}Ru , ^{100}Ru , ^{101}Ru , ^{102}Ru , ^{104}Ru)
- További 45 radioaktív izotóp és izomer

Előfordulás:

- Fém zárványokat (Mo-Tc-Ru-Rh-Pd) képező hasadási termék
- Magas hőmérsékleten és oxidáló atmoszférában illékony oxidokat képez
 $\text{RuO}_3(\text{g})$, $\text{RuO}_4(\text{g})$
- Környezetben $\text{RuO}_2(\text{s})$ formájában, gázfázisú vegyületek kondenzálódása aeroszol vagy porszemcséken

^{106}Ru felhasználás:

- Brachyterápia - uveális melanoma, retinoblastoma kezelés
- Radioizotópos termoelektromos generátorok (RTG) sugárforrása

Ruténium	
Atomszám	44
Atomtömeg	101,07 AMU
Fizikai forma	Ezüstfehér fém
Olvadáspont	2334 °C
Forráspont	4150 °C

Izotóp	Felezési idő ($T_{1/2}$)
^{95}Ru	1,643 h
^{97}Ru	2,84 d
^{103}Ru	39,3 d
^{105}Ru	4,44 h
^{106}Ru	371,5 d

^{106}Ru tulajdonságai

- Bomlási sor:

^{106}Ru ($T_{1/2} = 371,5 \text{ d}$)

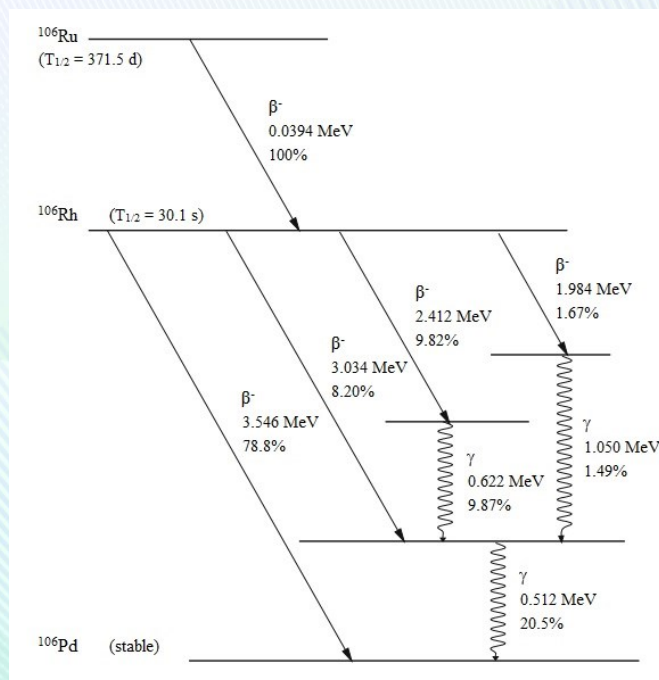
↓ β^- -bomlás

^{106}Rh ($T_{1/2} = 30,1 \text{ s}$)

↓ β^- -bomlás, γ -legerjesztődés

^{106}Pd (stabil)

- Szekuláris egyensúly kialakulása ^{106}Ru és ^{106}Rh között



Izotóp	β^- -bomlás		γ -emisszió	
	Energia (keV)	Gyakoriság (%)	Energia (keV)	Gyakoriság (%)
^{106}Ru	39,40 (21)	100	-	-
^{106}Rh	1545 (5)	0,448 (9)	511,8534 (23)	20,52 (23)
	1984 (5)	1,67 (3)	616,16 (3)	0,731 (17)
	2412 (5)	9,82 (15)	621,90 (4)	9,87 (15)
	2418 (5)	0,608 (21)	873,46 (6)	0,435 (8)
	3034 (5)	8,2 (3)	1050,39 (3)	1,490 (25)
	3546 (5)	78,80 (24)	1128,01 (3)	0,398 (8)
			1562,24 (3)	0,156 (8)

^{106}Ru mérésének technikai kérdései

β -sugárzás mérése:

- A tiszta β -bomló ^{106}Ru szelektív meghatározása kémiai elválasztást igényel

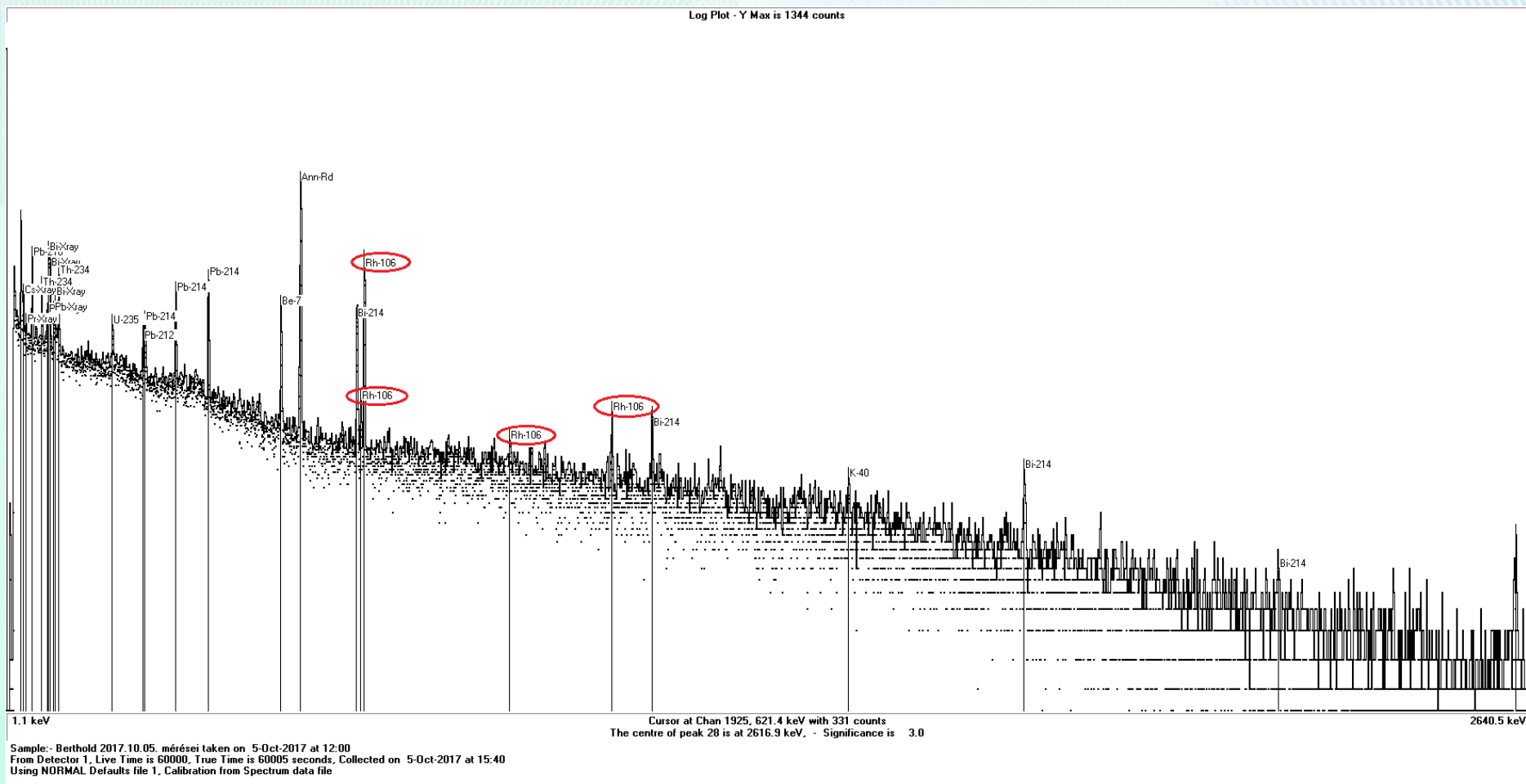
Összes-béta számlálás:

- β -bomló izotópok aggregát aktivitását adja meg
- ^{106}Ru (39,4 keV max. β -részecske energia) + ^{106}Rh (3546 keV max. β -részecske energia)
- Természetes komponensek: ^{40}K , rövid felezési idejű ^{222}Rn - és ^{220}Rn -bomlástermékek

Gamma-spektrometria:

- Nuklidspecifikus mérési módszer
- ^{106}Rh nuklidszelektív detektálása $\rightarrow$ ^{106}Ru indirekt meghatározása
- ^{106}Rh legfőbb γ -vonala 511,9 keV-nél ($P_\gamma = 20,52\%$) $\rightarrow$ potenciális interferencia az 511,0 keV-es annihilációs csúccsal
- ^{106}Rh nuklidazonosításához és a mennyiségi meghatározáshoz használható csúcsok:
621,9 keV ($P_\gamma = 9,87\%$), 873,46 keV ($P_\gamma = 0,435\%$) 1050,39 keV ($P_\gamma = 1,49\%$),
1128,01 keV ($P_\gamma = 0,398\%$)

^{106}Ru mérésének technikai kérdései



Országos Környezeti Sugárvédelmi Ellenőrző Rendszer

489/2015. (XII. 30.) Korm. Rendelet a lakosság természetes és mesterséges eredetű sugárterhelését meghatározó környezeti sugárzási helyzet ellenőrzési rendjéről és a kötelezően mérendő mennyiségek köréről:

„**3. § (3)** [...] környezeti sugárzási viszonyok és a környezetben mérhető egyes radionuklidok aktivitáskoncentrációja országos mérési eredményeinek

- gyűjtését,
- nyilvántartását
- és értékelését,
- valamint a kiemelt létesítmények környezetére vonatkozó sugárvédelmi hatósági ellenőrző programok koordinálását
- az [...] Országos Környezeti Sugárvédelmi Ellenőrző Rendszer (OKSER) végzi.”

„**4. §** Az OKSER feladatai

- a) [...] radioaktív anyagoknak a környezetbe történő nem tervezett kibocsátását okozó rendkívüli esemény következtében az [...] eredmények gyűjtése, elemzése, nyilvántartása és értékelése, [...]
- e) közreműködés az országos környezeti sugárzási helyzetre, valamint a radioaktív szennyezettségre vonatkozó nemzetközi értesítési és tájékoztatási kötelezettségek teljesítésében [...]

^{106}Ru detektálása Magyarországon

A környezetben detektálható ^{106}Ru országos mérési eredményeinek begyűjtése az Országos Atomenergia Hivatal (OAH) felügyeletével:

- Országos Környezeti Sugárvédelmi Ellenőrző Rendszer (OKSER)

Adatszolgáltatók:

- Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Nukleáris Technikai Intézet (BME NTI)
- Egészségügyi Radiológiai Mérő és Adatszolgáltató Hálózat (ERMAH)
- Magyar Tudományos Akadémia Energiatudományi Kutatóközpont (MTA EK)
- MVM Paksi Atomerőmű Zártkörűen Működő Részvénytársaság (PA Zrt.)
- Nemzeti Élelmiszerlánc-biztonsági Hivatal (NÉBIH)
- Országos Közegészségügyi Intézet Közegészségügyi Igazgatóság, Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Főosztály (OKI KI SSFO)
- Radioaktív Hulladékokat Kezelő Közhasznú Nonprofit Kft (RHK Kft.)

^{106}Ru detektálása a környezetben

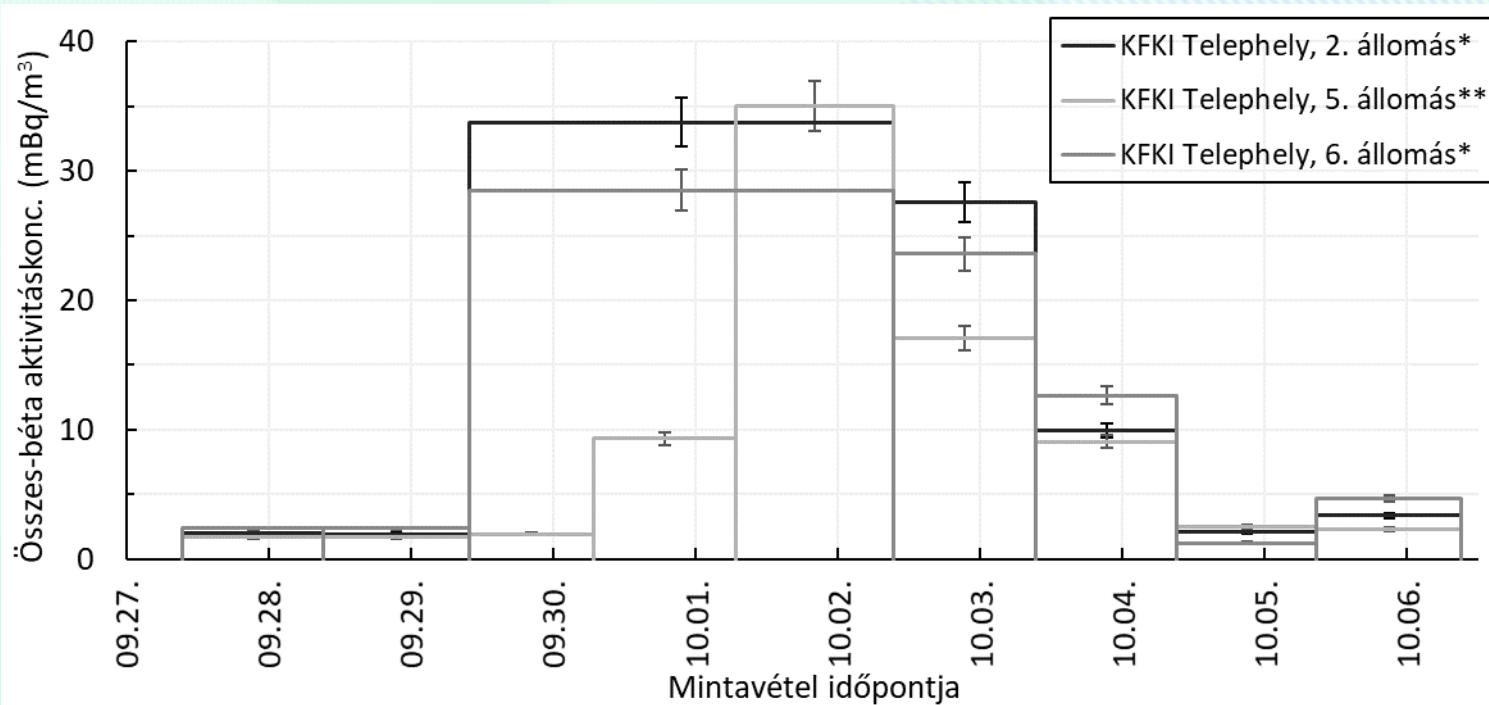
- ^{106}Ru detektálása környezeti mintákban: levegő, légköri kihullás (fallout), fű- és növényminták
- Feldolgozott hazai mérési eredmények: OKSER tagok által szolgáltatott, rendelkezésre álló adatok

Sorszám	Mérőhely	Detektálások száma, minták típusa (Mintavételi periódus)		
		Levegő minta	Fallout minta	Fűminta
1	Bátaapáti, RHK Kft.	5 párh. minta (09.25 – 10.09.)	-	1 minta (10.12.)
2	Budapest, MTA EK	12 párh. minta (09.25 – 10.09.)	2 párh. heti és 4 párh. havi minta (10.02 – 11.06.)	-
3	Budapest, NÉBIH	3 minta (09.25 – 10.09.)	-	2 minta (10.03 – 10.09.)
4	Budapest (referenciaállomás), ERMAH	2 minta (09.25 – 10.09.)	-	-
5	Budapest, OKI KI SSFO	3 minta (09.25 – 10.09.)	-	-
6	Budapest, BME NTI	2 minta (09.29 – 10.04.)	-	-
7	Győr, ERMAH	1 minta (09.26 – 10.03.)	-	-
8	Miskolc, ERMAH	2 párh. minta (09.29 – 10.09.)	-	1 minta (10.09.)
9	Paks, PA Zrt.	21 párh. minta (09.25 – 10.16.)	-	1 minta (10.05.)
10	Püspökszilág, RHK Kft.	2 minta (10.02 – 10.09.)	-	-

Levegőminták elemzése

Naponta vételezett levegőminták aktivitásának időbeni változása alapján becsülhető a

- ^{106}Ru szennyeződés környezetben való megjelenésének időpontja:
2017.09.30.
- ^{106}Ru szennyeződés környezetben való jelenlétének időtartama:
4 nap (2017.09.30 – 10.04. reggel)
- Aeroszol szűrőkön mért összes-béta aktivitáskoncentráció:



*Napi mintavétel (csak munkanapon).

** Napi mintavétel.

Mintavétel 100 m³/d
térfogatáramú levegő-
mintavevővel.

Levegőminták elemzése

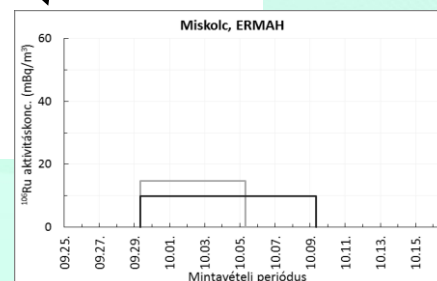
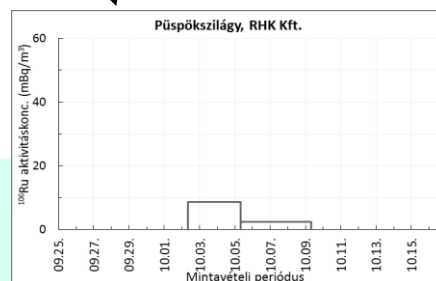
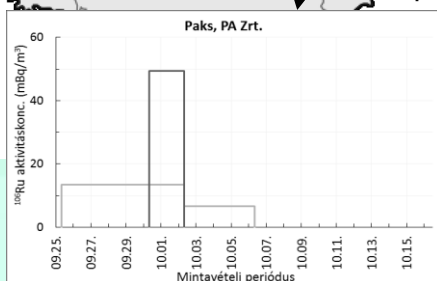
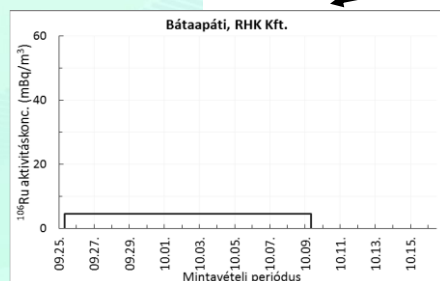
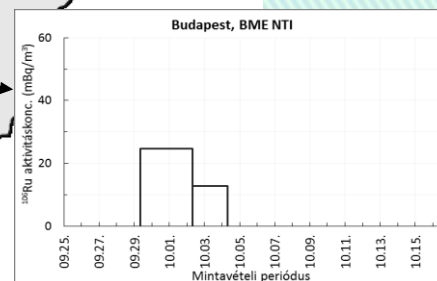
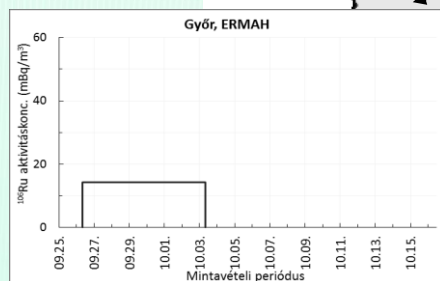
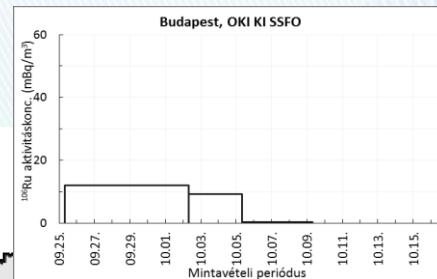
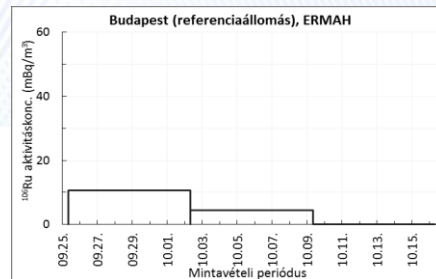
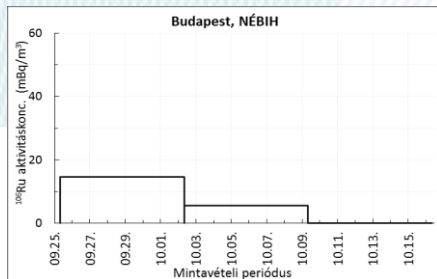
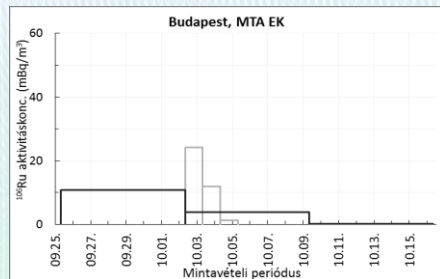
Mérési eredmények direkt összehasonlíthatóságának problematikája:

- Mintavételi periódusok eltérő hossza
a rutin mérési programokban foglalt eltérő mintavételi gyakoriságok
az eltérő térfogatáramú levegő-mintavevőkkel elérhető különböző érzékenységek
- Amennyiben a mintavételi periódus hosszabb, mint a ^{106}Ru szennyeződés jelenlétének időtartama, alábecsüljük a környezeti ^{106}Ru -aktivitáskoncentrációt, ha a mért mennyiséget a teljes mintavételi időtartamra nézve integráljuk

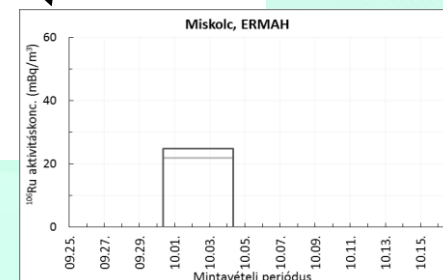
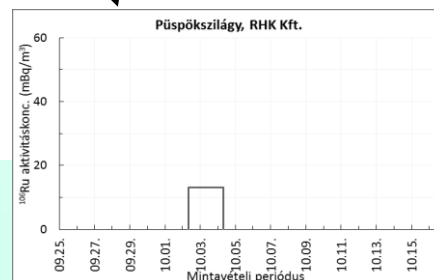
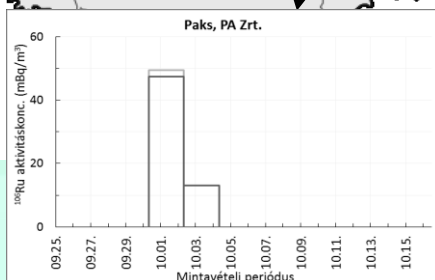
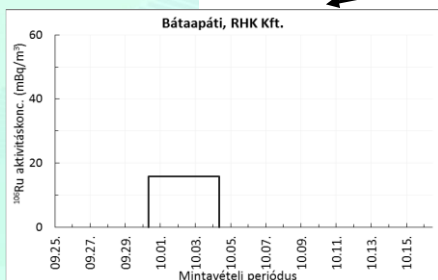
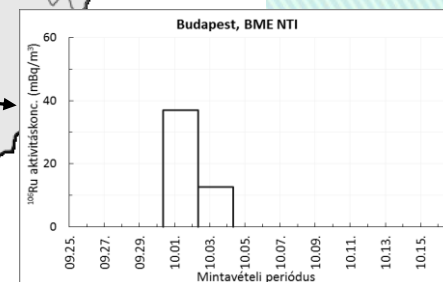
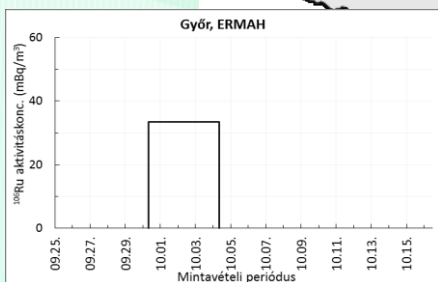
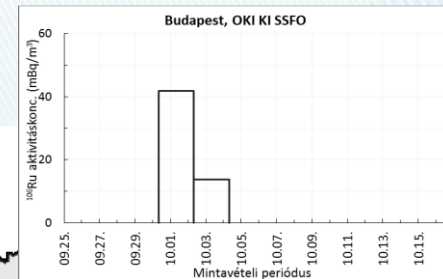
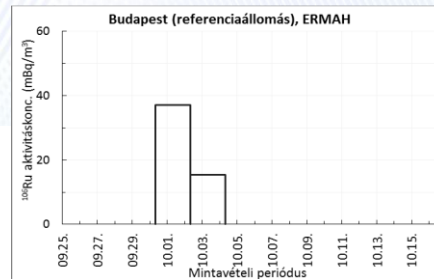
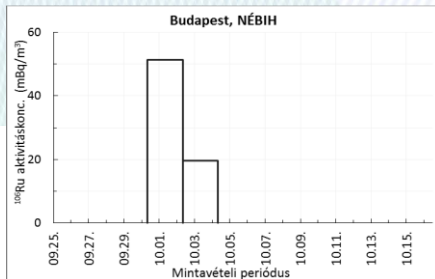
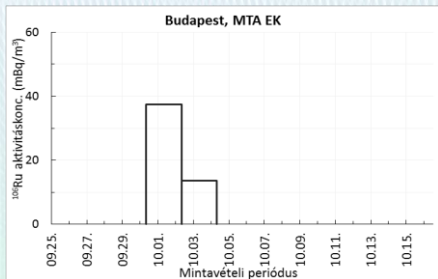
A direkt összehasonlíthatóság problémájának megoldása:

- A mintában mért értékek súlyozása a mintavétel időtartamának és a ^{106}Ru -csóva tartózkodási időtartamának arányával
 ^{106}Ru -csóva tartózkodási időtartamának becslése a napi minták összes-béta aktivitáskoncentrációja alapján

Aeroszol szűrők nyers mérési adatai

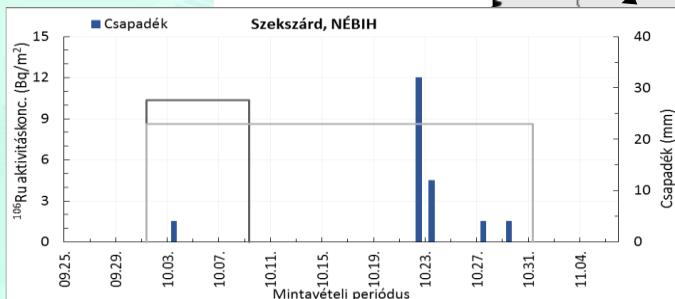
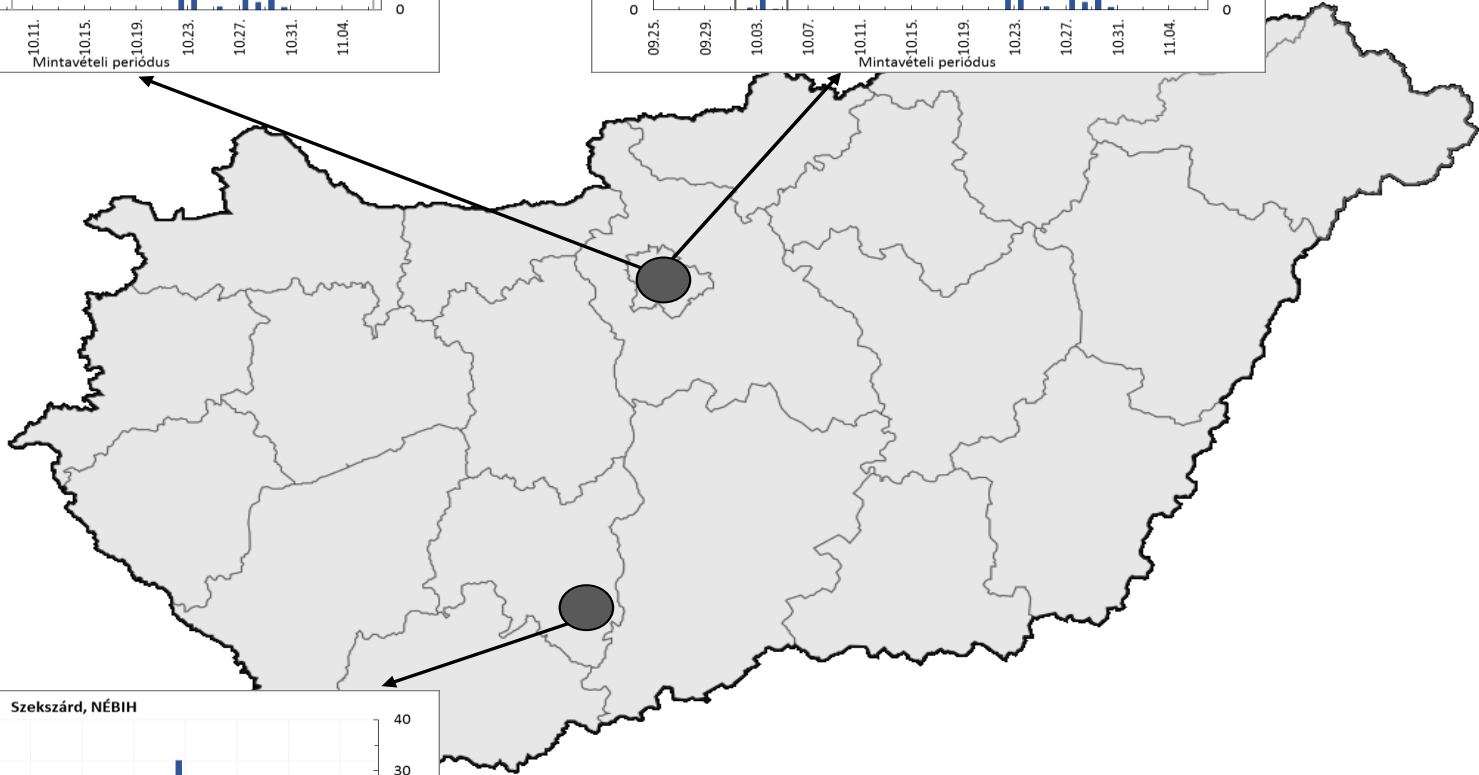
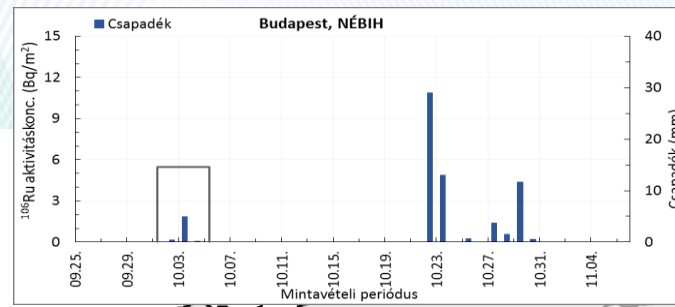
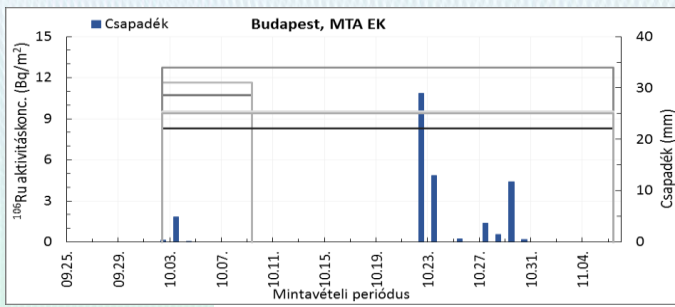


Aeroszol szűrők mérésének korrigált eredményei

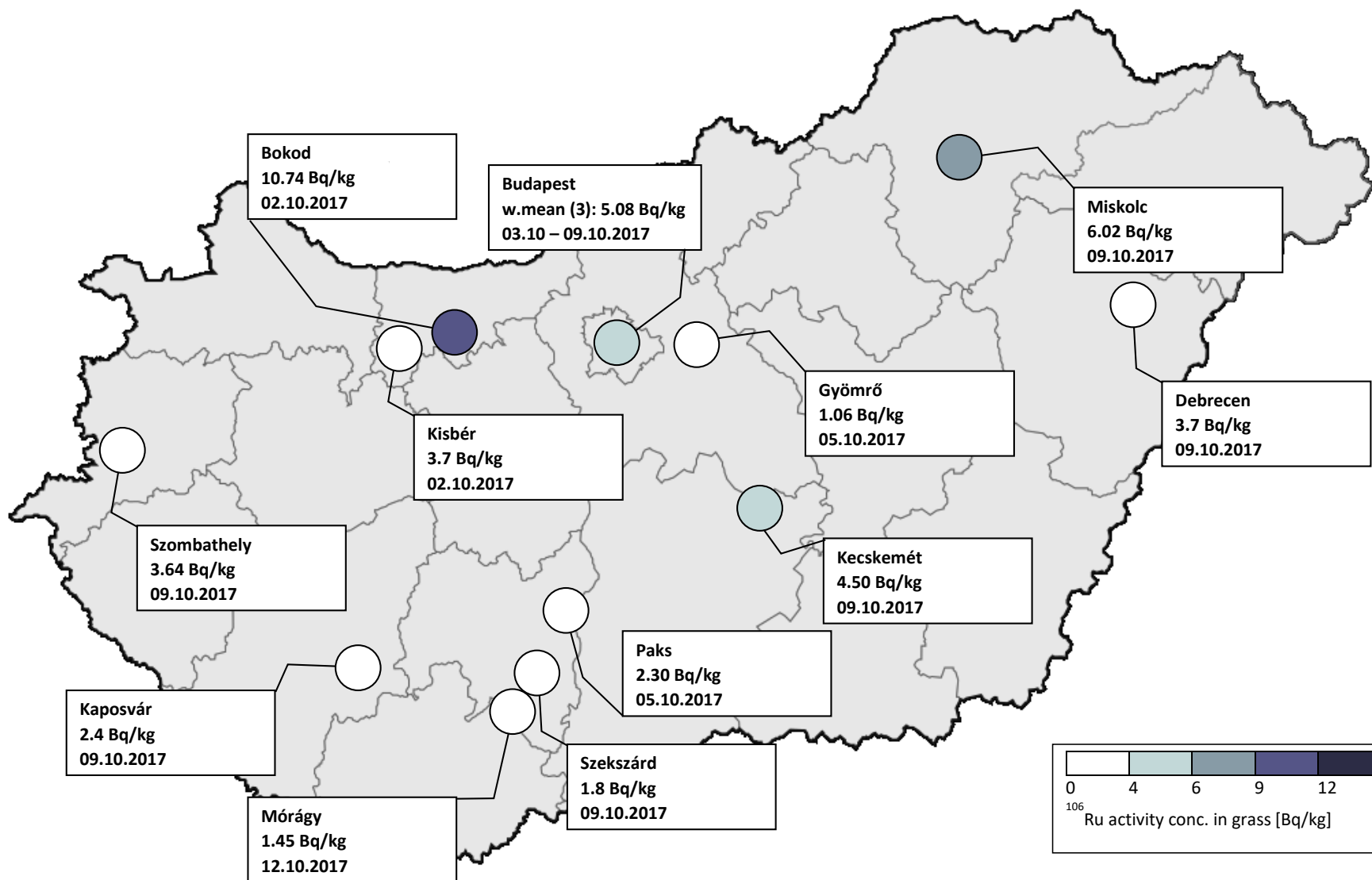


Aeroszol szűrők gamma spektrometriai analízisének eredményei

Mérőhely	Mintavételi periódus	Aeroszol szűrőkön mért átlagos ¹⁰⁶ Ru aktivitáskonc. a teljes mintavételi periódusra (mBq/m ³)	Korrigált ¹⁰⁶ Ru aktivitáskonc. a ¹⁰⁶ Ru csóva jelenlétének időtartamára (mBq/m ³)
Bátaapáti, RHK Kft.	09.25 – 10.09.	4,5 (5 párh. minta)	16 (5 párh. minta)
Budapest, MTA EK	09.25 – 10.02.	11 ± 0,6 (13 párh. minta)	38 ± 2,0 (13 párh. minta)
Budapest, MTA EK	10.02 – 10.03.	24 ± 1,7 (3 párh. minta)	24 ± 1,7 (3 párh. minta)
Budapest, MTA EK	10.03 – 10.04.	12 ± 0,9 (3 párh. minta)	12 ± 0,9 (3 párh. minta)
Budapest, MTA EK	10.02 – 10.09.	3,9 ± 0,2 (13 párh. minta)	14 ± 0,9 (13 párh. minta)
Budapest, NÉBIH	09.25 – 10.02.	15 ± 0,3	51 ± 1,0
Budapest, NÉBIH	10.02 – 10.09.	5,6 ± 0,1	20 ± 0,4
Budapest, ERMAH	09.25 – 10.02.	11 ± 0,5	37 ± 1,9
Budapest, ERMAH	10.02 – 10.09.	4,4 ± 0,2	15 ± 0,8
Budapest, OKI KI SSFO	09.25 – 10.02.	12 ± 0,6	42 ± 2,1
Budapest, OKI KI SSFO	10.02 – 10.03.	9,2 ± 0,3	14 ± 0,4
Budapest, BME NTI	09.29 – 10.02.	25	37
Budapest, BME NTI	10.02 – 10.04.	13	13
Győr, ERMAH	09.26 – 10.03.	14 ± 1,1	33 ± 4,0
Miskolc, ERMAH	09.29 – 10.05.	15 ± 0,4	22 ± 5,3
Miskolc, ERMAH	09.29 – 10.09.	10 ± 1,8	25 ± 2,2
Paks, PA Zrt.	09.25 – 10.02.	14 (9 párh. minta)	47 (9 párh. minta)
Paks, PA Zrt.	09.30 – 10.02.	50 (9 párh. minta)	49 (9 párh. minta)
Paks, PA Zrt.	10.02 – 10.06.	6,6 (3 párh. minta)	13 (3 párh. minta)
Püspökszilágy, RHK Kft.	10.02 – 10.05.	8,7	13
Átlag (mBq/m³)		13	27



Fallout mérések eredményei



Dózisszámítások

Lakossági dózisterhelés meghatározása felnőtt korcsoportra vonatkozóan, az alábbi közvetlen besugárzási útvonalak figyelembevételével:

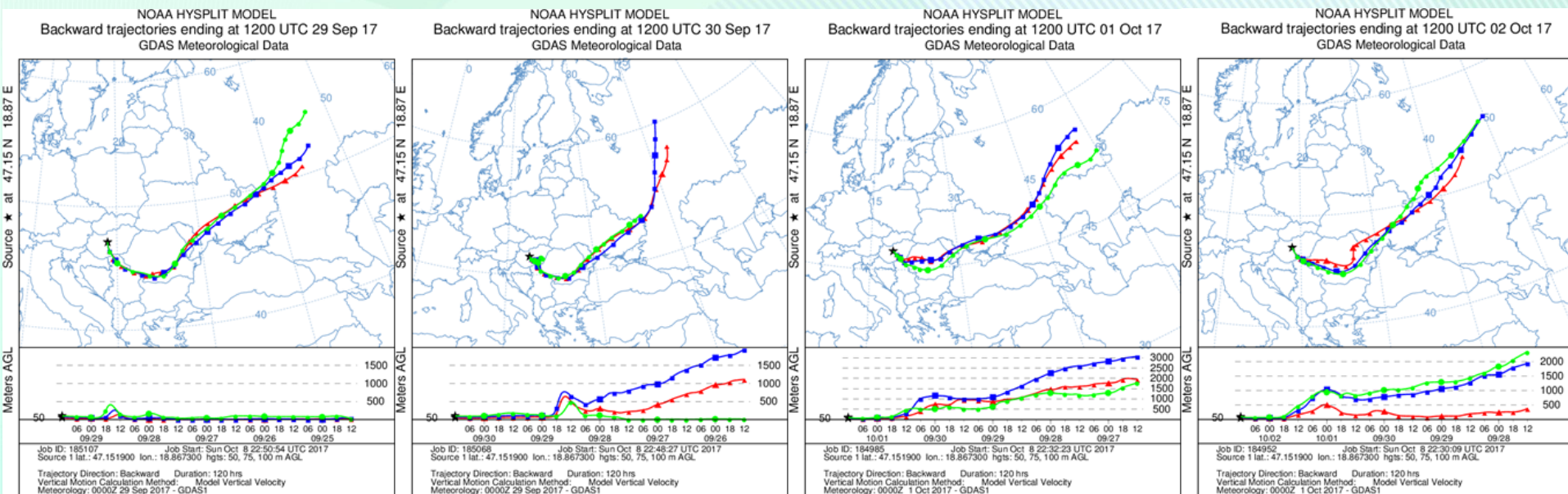
- A felhő sugárzásából származó effektív dózis,
- A talajra ülepedett radionuklidtól származó effektív dózis,
- Inhalációs dózis.

Felhő sugárzásából származó effektív dózis – egy hetes, $26,7 \text{ mBq/m}^3$ ^{106}Ru -tartalmú levegőn való állandó ott tartózkodás mellett		
Dóziskonverziós tényező (mSv/mBq·h/m ³)		Effektív dózis (mSv)
3,74E-11		1,68E-07
Talajra ülepedett radionuklidtól származó effektív dózis – $11,3 \text{ mBq/m}^2$ ^{106}Ru kiülepedését követő egy hetes állandó expozíció mellett		
Dóziskonverziós tényező (mSv/mBq·h/m ²)		Effektív dózis (mSv)
7,63E-13		1.44E-12
Inhalációs dózis – $26,7 \text{ mBq/m}^3$ ^{106}Ru aktivitású levegő konstans, egy hetes belégzésekor		
Dóziskonverziós tényező (mSv/mBq)	Légzési sebesség (m ³ /h)	Effektív dózis (mSv)
6,60E-08	9,25E-01	2,72E-04
Effektív dózis (mSv)		2,73E-04

Légekri terjedésszámítás

Inverz trajektória számítás HYSPLIT modellel a kibocsátási pont lehetséges elhelyezkedésének meghatározására

Paraméter	
Koordináta	47.151900 lat. 18.867300 long.
Inverz trajektória kiindulási időpontja	2017.09.27 – 10.04.
Teljes futtatási idő	120 óra = 5 nap
Trajektória szintje (receptorpont feletti magasság)	50, 75, 100 m



Köszönetnyilvánítás

A szerzők ezúton mondanak köszönetet az alább feltüntetett adatszolgáltatóknak, akik rendelkezésre bocsátották mérési eredményeiket.

- Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Nukleáris Technikai Intézet (BME NTI)
- Egészségügyi Radiológiai Mérő és Adatszolgáltató Hálózat (ERMAH)
- Magyar Tudományos Akadémia Energiatudományi Kutatóközpont (MTA EK)
- MVM Paksi Atomerőmű Zártkörűen Működő Részvénytársaság (PA Zrt.)
- Nemzeti Élelmiszerlánc-biztonsági Hivatal (NÉBIH)
- Országos Közegészségügyi Intézet Közegészségügyi Igazgatóság, Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Főosztály (OKI KI SSFO)
- Radioaktív Hulladékokat Kezelő Közhasznú Nonprofit Kft (RHK Kft.)



Köszönöm a megtisztelő figyelmet!



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT