



A ¹³⁷CS KIMUTATHATÓSÁGA PEST MEGYEI TALAJMINTÁKBAN

Készítette:

Szabó Katalin Zsuzsanna Környezettudományi szak

Udvardi Beatrix Földtudomány BSc szak

Témavezetők:

Szabó Csaba, Ph.D. ELTE TTK Kőzettani és Geokémiai Tanszék, Litoszféra Fluidum Kutató Laboratórium Dr. Horváth Ákos ELTE TTK Atomfizikai Tanszék

Budapest, 2008.

TARTALOMJEGYZÉK

Ábrák és táblázatok jegyzéke 3
Bevezetés 5
1. ¹³⁷ Cs a környezetünkben 6 1. 1 A céziumról általában 6 1. 2 A ¹³⁷ Cs környezetvédelmi fontossága 7 1. 3 Cézium a talajban 10
2. A vizsgált terület földtani és talajtani ismertetése 12
3. Mintavételezés 13
4. Vizsgálati módszerek 16 4. 1. Általános talajtani vizsgálatok 16 4. 1. Néhány talajtani tulajdonság meghatározása 16 4. 1. 2. Szitálás 16 4. 2. Gamma-spektroszkópia 17 4. 3 Termikus vizsgálatok 21 4. 4 Pásztázó elektronmikroszkópos elemzés (Scanning Electron Microscope - SEM) 22
5. Vizsgálati eredmények
6. Az eredmények értelmezése 33 6. 1 A ¹³⁷ Cs-térkép jelentősége 33 6. 2. A ¹³⁷ Cs-változás a szemcseméret, az agyagásvány-és a szervesanyag tartalom 33 függvényében 33 6. 3. ¹³⁷ Cs-mélység szerint 37
7. Összefoglalás
Köszönetnyilvánítás
Demonstrability of ¹³⁷ Cs in soil samples of Pest County 40
Irodalomjegyzék 41

Ábrák és táblázatok jegyzéke

1. ábra. A ¹³⁷ Cs bomlássémája
2. ábra. A Csernobil utáni ¹³⁷ Cs szennyezés kiterjedése (Praxis, 2005)
3. ábra. A radionuklidok szárazföldi táplálékláncbeli mozgásának leírására alkalmas
kompartment modell a fontosabb terjedési útvonalakkal (Kanyár, 2004)
4. ábra. A cézium megkötődése (FES helyen) agyagásványokban (Eriksson et al, 2005)
FES: frayed edge site. Az agyagásványok lamelláinak a felülete ha nem sima
("fraved=rojtos") könnyen elősegíti a ¹³⁷ Cs megkötődését és a rétegközi térbe való
jutását
5. ábra. 1992-es talajmintavételi pontok helyei Pest megyében (fekete háromszög). A
térkép mutatja az általunk mélyített PM1 fúrás helyét (fekete kör) két 1992-es fúrás
közelében
6. ábra. A PM1 talajfúrás szelvénye
7. ábra. A HPGe detektor egy mintatartó kamrával vizsgálat előtt
8. ábra. Egy jellegzetes talajminta gamma-spektruma a ¹³⁷ Cs (valamint ²²⁶ Ra és ⁴⁰ K)
karakterisztikus csúcsával
9. ábra. A hatásfok számításának egyenletét tartalmazó diagram, a hatásfok
magasságfüggésének számítása nyomán 20
10. ábra. A PM1 talajszelvényből származó, talajminták szemcsefrakcióinak tömeg%-os
eloszlása, függőleges tengelyen a minták származási mélységének feltüntetésével.
PM11=0-10 cm, PM12=15-30 cm, PM13= 30-50 cm
11. ábra. A PM1 refenciafúrás talajszelvényének 137Cs aktivitása a mélység
függvényében
12. ábra Pest megyére vonatkozó cézium térkép a '92-es minták felső rétegének (0-30 cm)
¹³⁷ Cs (Bq/kg) értékeiből
13. ábra. A <0,063 mm frakció termoanalitikai görbéi. A DTA görbe 103,3 °C-nál
jelentkező endoterm csúcsa jelzi az adszorptív víz eltávozását, majd széles exoterm
csúccsal jelenik meg a szervesanyag és a FeOOH vízvesztése. 568,1 °C-nál az
agyagásványok vesztik el szerkezeti vizüket, majd 946,4 °C-nál újabb vízvesztés
jelentkezik, ahol az exotem csúcs leszálló ágában mullit képződik
14. ábra. Az E07-es fúrásból származó aggregátum szekunder elektron képe. A sötétebb
(kisebb átlagrendszámú) részek szervesanyag, és agyagásvány tartalmat jeleznek. 31
15. ábra. Az E07-es fúrásból származó egyik szemcse káliumtartalmú agyagásvány
spektruma
16. ábra. Az I08-as fúrásból származó egyik szemcse szervesanyag spektruma
17. ábra. A ¹³⁷ Cs koncentráció és a szemcseméret összefüggése
18. ábra. Bihari és Dezső (2004) által meghatározott ¹³⁷ Cs aktivitás a szemcseméret
függvényében
19. ábra. A 137Cs aktivitás és ásványi alkotók kapcsolata a PM1-es fúrás
szemcsefrakcióiban. A diagram tartalmazza a mért 137Cs koncentráció hibáját 36
20. ábra A PM11 minta ¹³⁷ Cs aktivitása, agyagásvány- és szervesanyag tartalma közötti
összefüggés

1. táblázat. Különböző szerzők által meghatározott eliminációs felezési idők ¹³⁷ Cs-re 10
2. táblázat. A kontinentális felsőkéreg átlagos elemösszetétele %-ban Condie (1993)
nyomán
3. táblázat. A PM1 talajszelvényből vett minták szitált adatai (PM11= 0-10 cm,
PM12=15-30 cm, PM13= 30-50 cm)
4. táblázat. A '92-es fúrások felső 30 cm-ében mért ¹³⁷ Cs aktivitás (Az x-el jelölt minták
esetében nem mértünk ¹³⁷ Cs-et)
5. táblázat. A PM1 refenciafúrás felső részének szitált frakcióin mért ¹³⁷ Cs aktivitása
<i>Bq/kg-ban</i>
6. táblázat. A PM1 talajszelvény legfelső rétegének szitálással elválasztott frakcióin
számolt adatok a derivatogramok elemzése során
7. táblázat. A fúrt minták mélység szerinti 137Cs tartalma (a hiba feltüntetésével) 38

Bevezetés

Pest megye területére vonatkozó gammaspektroszkópiai vizsgálatokon alapuló radontérkép adatbázisának feldolgozása közben - amely 31 talajfúrás alapján készül figyeltünk fel arra, hogy néhány talajszelvény felső rétegeiben megtalálható a cézium 137-es tömegszámú izotópja. E radioaktív izotóp az 1945 és 1980 között zajló légköri atomfegyver kísérletekből illetve az 1986. április 26-án az ukrajnai Csernobil és Pripjaty városok melletti atomerőmű-balesetből származhat, ahogyan azt számos, más területen (pl. Fehéroroszország, Skandinávia, Ausztria, Svájc) (Ivanova et al., 1997, Riesen, 1998, Dubois and Bossew, 2003, Almgren and Isaksson, 2006, Persson, 2008,) történt vizsgálat megállapította. Ennek oka, hogy a baleset és a robbantások következményeként az aeroszolokra és a csapadékra kiülepedő radioaktív izotópok – köztük az emberre nézve veszélyes, hosszú élettartamú radionuklidok (pl. ¹³⁷Cs és ⁹⁰Sr) – a légkörben vándoroltak és kiülepedtek.

Dolgozatunkban a 30 év felezési idejű ¹³⁷Cs izotóp pest megyei eloszlását összesítettük 1992-ben gyűjtött talajfúrások felső rétegeinek (általában 30 cm és 60 cm) gammaspektroszkópiai elemzése alapján. A feldolgozás során két talajfúrás felső rétegében (30 cm) az átlagos 2-3 Bq/kg értékhez képest nagyobb - 12-32 Bq/kg aktivitást mértünk a Budai-hegység DNy-i lábánál. E fúrások környezetében egy új fúrást mélyítettünk. Az itt gyűjtött nagyobb mennyiségű minta lehetővé tette, hogy részletes talajtani, fizikai és geokémiai vizsgálatokat végezzünk. Célunk a külföldi tapasztalatokhoz hasonló (Zygmunt et al., 1997, Filep, 1999) összefüggést keresni a cézium mélység szerinti eloszlása és a talajtani jellemzők (agyagásvány-, szervesanyagtartalom, szemcseméret) között.

1. ¹³⁷Cs a környezetünkben

1.1 A céziumról általában

A cézium a periódusos rendszer 55. rendszámú kémiai eleme. Az I. főcsoportba, az alkálifémek közé tartozik. Közismert, hogy az alkálifémek a Föld felszinén nagyon reakcióképesek, ezért elemi állapotban a cézium sem található meg a természetben. Halogénekkel szeret ionos sókat képezni. Vegyületekben Na-t és K-ot (hasonló tulajdonságú alkálifémek) helyettesítheti.

A földkéreg kb. 1-3 ppm céziumot tartalmaz, azonban meg kell jegyezzük, hogy e természetes mennyiséghez az antropogén forrásból eredő cézium is hozzátartozik. Felhalmozódása lítium és bór ásványokban figyelhető meg, igen csekély mennyiségben az előbb leírtakból következően kálium és nátrium vegyületek kisérője (pollucit: (Cs,Na)₂Al₂Si₄O₁₂·(H₂O), lepidolit: (Cs,KLi₂Al(Si₄O₁₀)(F,OH)), rhodizite (K,Cs)Al₄Be₄(B,Be)₁₂O₂₈).

Egy természetes stabil izotópja van - a 133 Cs -, ún. tiszta elem. Mesterséges radioaktív izotópjai közül jelenleg mintegy 43 ismert. Ezek közül a 134 Cs-nek és a 137 Cs-nek olyan nagy a felezési ideje, ami elegendő ahhoz, hogy vándoroljon és felhalmozódjon az élőlényekben és a talajban. A 134 Cs felezési ideje 2 év és nagyon kis koncentárcióban lehet megtalálni. A 137 Cs-ot viszont 30 év felezési ideje miatt ki lehet mutatni a talajokban, illetve az élő szervezetekben. Ez az izotóp β -bomlással metastabil 137 Ba-má bomlik, amelyet 2,5 perces felezési idő után követ a stabil 137 Ba (1. ábra) (http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/).



1. ábra. A ¹³⁷Cs bomlássémája

1.2 A ¹³⁷Cs környezetvédelmi fontossága

Az első atombomba kísérlet 1945 júliusában történt az Egyesült Államokban. Ezt követően 1980-ig 423 regisztrált légköri atomkísérletet végeztek. A légköri atomrobbantások következményeként megjelenő radioaktív csapadék a kísérlet típusától, helytől és erősségtől függően, a troposzférában és sztratoszférában kiülepedett, majd onnan került a felszínre (Hayakawa, 1995).

A csernobili atomrobbanás eredményeként a légkörbe került radioaktív izotópok az időjárási viszonyoknak megfelelően vándoroltak a troposzférában. Először Belorusszia területeit érte a szennyezés, ezután haladt nyugat felé, ahol elérve Skandináviát a széljárás északnyugativá változott, ezáltal juthatott a radioaktív felhő Közép- és Dél-Európa területei fölé, így Magyarországra is, ahogyan azt a cézium szennyeződésből adódó eloszlás mutatja a 2. ábrán (Praxis, 2005). A ¹³⁷Cs a korábban említett két forrásból származik és munkánknak nem volt célja, hogy különbséget tegyünk a forrásokból származó aktivitáshányadok között.



2. ábra. A Csernobil utáni ¹³⁷Cs szennyezés kiterjedése (Praxis, 2005)

A csernobili balesetet követően a radiológiai állapotot elsősorban a ¹³⁷Cs határozta meg. A talajra került ¹³⁷Cs külső sugárdózis forrása, táplálékkal a szervezetbe kerülve belső dózist is eredményezhet (3. ábra). A csernobili nukleáris balesetet követő hazai sugárterhelés járuléknak közel 50%-a a táplálékkal a szervezetbe került ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, és ¹³¹I radionuklidok sugárzásából származott (Kanyár, 1999). Először csak a friss növényekben lehetett kimutatni, majd később az állati eredetű élelmiszerekben is (tej, hús), bár számos korábbi kísérlet is igazolta megkötődését az élőlényekben (Harrison és McNeill, 1963, Eapen és Narayanan, 1971, Teherani, 1988).



3. ábra. A radionuklidok szárazföldi táplálékláncbeli mozgásának leírására alkalmas kompartment modell a fontosabb terjedési útvonalakkal (Kanyár, 2004)

A β-sugárzás a bőr mélyebb rétegeibe is behatol, nagyobb dózis esetén bőrdaganatos megbetegedést és szemlencse károsodást okoz. A testszövetben néhány mm távolságon belüli szerveket, szöveteket károsítja (Somlai, 2004). Egyenletesen szétoszlik a test lágyszöveteiben, nagyobb koncentrációban található az izmokban és a csontvelőben, kisebb koncentrációban pedig a csontokban és a zsírban (Yamagata, 1962, Harrison és McNeill, 1963, Eapen és Narayanan, 1971, EPA, 2002). A szervezetben a káliumhoz hasonlóan, az izomszövetekbe épül be, innen a vérplazmán keresztül választódik ki a vizelettel (Kanyár, 1999). Ennek megfelelően a biológiai felezési ideje viszonylag rövid - amint az 1. táblázat mutatja - és néhány hónap alatt teljesen kiürül (Harrison és McNeill, 1963).

Biológiai felezési idő ¹³⁷ Cs-re napban kifejezve	Szerzők	
92.5, 157	Miller and Steingraber (1957)	
110, 115, 119	McNeill és Green (1959)	
145	Anderson et al. (1957)	
185	Stewart et al. (1958)	
80, 118, 115, 123	Taylor (1962)	
110, 116, 130, 145	Richmond, Furchner és Langham (1962)	
76	Yagamata (1962)	

1. táblázat. Különböző szerzők által meghatározott eliminációs felezési idők ¹³⁷ Cs-re

1.3 Cézium a talajban

A talajban lévő agyagásványok mennyisége és minősége fontos szerepet játszik a ¹³⁷Cs talajban való előfordulásában, mert hajlamos megkötni a céziumot. A talajban majdnem teljes egészében Cs⁺ ion formájában van jelen, egyszeres pozitív töltése révén számos különböző kötési helyet betölthet (Kabai, 2003):

- 1. vízoldható forma (a növények felvételéhez hozzájárul),
- cserélhető forma (főleg NH4⁺ ionokkal cserélődve a növények gyökerei fel tudják venni),
- oxidálható szervesanyaghoz kötött (a növények csak akkor vehetik fel, ha oxidáció vagy biodegradáció történik és így deszorpció következik be),
- savval oldható és maradék oldhatatlan anyag (a növények nehezen vagy egyáltalán nem vehetik fel, szorosan a talajhoz kötött.

E formák szerepe erősen eltérő, Soldat és Harr (1971) kutatásai szerint a ¹³⁷Cs 25-65 %-a vízoldható, míg 20-40 %-a ioncserélhető formában van jelen a talajban.

A talajokban a ¹³⁷Cs szorosan és tartósan kötődik az agyagásványokhoz. Még az agyagásványok nagyon kis mennyisége is elegendő a céziumfixációhoz, azonban kivételt képeznek a nagy szervesanyagtartalmú talajok, ahol hamar eltűnik a talaj felső részéből

és gyorsan elérheti a talajvíz szintjét (Kanyár, 1999). Irodalmi adatok alapján (Larsson, 2008) a humuszban gazdag talajokban a gyökérzet nagy mennyiségben megköti a ¹³⁷Cs-t.

A ¹³⁷Cs a szerves kötőhelyekre adszorbeálódik, amint csökken a talajoldatban a koncentrációja, az előbb említett kötőhelyekről könnyen pótlódnak ionok az oldatba, azonban ez a kicserélődés nem tesz különbséget a K⁺ és a Cs⁺ között. Ennek következménye, hogy a céziummigráció-arány a szerves talajokban és a podzol talajokban (nagy kationcserélő képességű talajokban) a legnagyobb, mert az ionok között kompetíció lép fel. Ugyanakkor a növekvő agyagásvány tartalom megnöveli a ¹³⁷Cs szorpcióját a negatív töltésű kolloidok felületén (Larsson, 2008).

Az agyagásványok felületén és az interlamináris helyeken is megkötődhet (Eriksson et al, 2005) (4.ábra). A folyamatot erősen befolyásolja a pH és más ionok jelenléte. Savas pH esetén a Cs⁺ fele 1 év alatt feloldódik, míg lúgos környezetben ehhez minimum 14 év szükséges. A savas talajfeltételek általában lassítják a szorpciót, úgy a szerves, mint a szervetlen talajban.



4. ábra. A cézium megkötődése (FES helyen) agyagásványokban (Eriksson et al, 2005) FES: frayed edge site. Az agyagásványok lamelláinak a felülete ha nem sima ("frayed=rojtos") könnyen elősegíti a ¹³⁷Cs megkötődését és a rétegközi térbe való jutását.

Nem mellékes a talaj fajtája és a hidrológiai adottságok sem elhanyagolhatók a ¹³⁷Cs megkötődés szempontjából. A réti talajokból például a ¹³⁷Cs 10-25 év alatt tisztul ki. A ¹³⁷Cs migrációja a talajban függőlegesen lassú, a réti talajokban a felső 20 cm-ben dúsul (az összes ¹³⁷Cs tartalom 90%-a pedig a felső 5 cm-ben). A tőzeges talajokban a migráció ennél nagyobb mértékű, a felső 5 cm-ben mindössze a ¹³⁷Cs 40-70%-a dúsul fel (Larsson, 2008).

A szemcseméret és a ¹³⁷Cs megkötődés összefüggését több kutató vizsgálta (Yamagata, 1962, Bunzl et al, 1997, Bihari és Dezső, 2004,). A kisebb frakciókban a fajlagos felületet figyelembe véve a radionuklidok nagyobb arányban fordulnak elő.

2. A vizsgált terület földtani és talajtani ismertetése

A vizsgált terület - azaz Pest megye - földtani jellemzése a felszínen található kőzetek leírására és bemutatására szorítkozik a kőzetképződési és földtani folyamatok ismertetése nélkül, tekintettel a dolgozat témájára.

Pest megye északnyugati részén lévő hegyvidéki terület a Dunántúli-Középhegység legkeletibb részeihez tartozik (pl. Zsámbéki-medence, Budai-hegység, a Pilis és a Visegrádi-hegység) és az Északi-Középhegység legnyugatibb részét képező Börzsönyhöz. Ennek egyik déli nyúlványa a Déli-Cserhát a Gödöllői-dombsággal részben ölelve. A megye nagyobbik része az Alföldhöz tartozik (Pesti-síkság, Szentendrei- és Csepel-sziget, Dunamenti-síkság, Duna-Tisza-közi homokos hátság északi része, valamint északról és keletről ehhez kapcsolódó Tápió-vidék és a Zagyva-medence nyugati és déli része (Frisnyák, 1984).

A Bicske-Zsámbéki-medence az Etyeki-dombság és a Zsámbéki-medence kistájakból áll. Negyedidőszaki lösszel fedett hullámos felszín jellemzi, amelynek magasabb területei főleg triász dolomitból és mészkőből állnak, amelyen köves sziklás váztalajok és rendzinák az uralkodó talajok (Frisnyák, 1984). A lejtőüledékeken és a medencékben löszön agyagbemosódásos barna erdőtalajok és barnaföldek alakultak ki.

A Budai-hegységet elsősorban triász mészkő, dolomit, mészmárga, oligocén homokkő, pannon üledékek és lösz építik fel. A tömör karbonátos kőzeteken rendzinák és köves sziklás váztalajok, a márgákon barnaföldek, a pannon üledékeken, homokköveken barna erdőtalajok és barnaföldek fordulnak elő (Sefanovits, 1999). Az erózió által erősen lepusztult térszíneken földes kopárok és humuszkarbonát talajok váltakoznak lejtőhordalék talajokkal. A Tétényi-fennsík felszínét szarmata pados mészkő és miocén homokos kavics formálták. A mészkövön barna rendzinák és barnaföldek képződtek. A Budaörsi-és a Budakeszi-medence fiatalon lesüllyedt területek, amelyeket a környező hegyek kőzetei és talajai, valamint lösz töltött fel. Ettől északra helyezkedik el a Pilis-hegység, amelynek fő építő anyaga mészkő (Frisnyák, 1984). A Visegrádi-hegység miocén vulkáni eredetű kőzetekből (andezit láva és piroklasztit) áll. E kőzetek málladékán a Budai-Pilisi-hegység néhány magasabb fekvésű részén agyagbemosódásos barna erdőtalaj található (Szűcs, 1966). A kevésbé elterjedt triász és eocén korú karbonátos kőzetein foltokban rendzina települt.

A Gödöllő-Monori-dombság ÉNY felől fokozatosan lejt az Alföld felé. Központja miocén homokkő és kavics, amely az Alföld felé felső-pannóniai homokos üledéket követ. Erre települ az Ős-Duna és mellékfolyói által elterített kavics, valamint pannon végi édesvízi mészkő és márga, illetve mésszel cementált homok. Mindezt DK felé fokozatosan vastagodó lösz és futóhomok borította be a pleisztocénben. A magasabb fekvésű és a homokosabb területeken agyagbemosódásos barna erdőtalajok keletkeztek, amelyeket DK felé és a dombhát K-i, Ny-i peremei felé fokozatosan barnaföldek, csernozjom barna erdőtalaj és mészlepedékes csernozjom követ (Stefenovits, 1999).

Az Alföld északnyugati részén fiatal negyedidőszaki hordalékkúpok formálták a felszínt, feltöltötték a Pesti-síkságot és létrehozták a Szentendrei- és a Csepel-szigetet, ahol öntéscsernozjomok fordulnak elő lösszerű iszapon (Frisnyák, 1984). A mélyebben fekvő és fiatalabb öntésekből felépült síkságokon a humuszos öntés- és a réti öntéstalajok jellemzők, dél felé már az agyagosabb réti talajok fordulnak elő. A régi folyómedrekben szikes talajok keletkeztek (Frisnyák, 1984).

3. Mintavételezés

A dolgozatban feldolgozott és tanulmányozott talajminták nagy része 1992-ben Pest megyében gyűjtött átlagminták, amelyek 31 fúrásból 0-30, 30-60, 60-90, 90-120 és 120-150 cm mélyről származnak (5. ábra).



5. ábra. 1992-es talajmintavételi pontok helyei Pest megyében (fekete háromszög). A térkép mutatja az általunk mélyített PM1 fúrás helyét (fekete kör) két 1992-es fúrás közelében.

Ezt a mintaegyüttest a Páty, Biatorbágy és Budakeszi hármas kiszögellés középpontjában – a Pilisi Parkerdő Zrt. Üzemi Vadászterületének tőszomszédságában kiválasztott helyen (5. ábra) - mélyített PM1 fúrással (GPS koordinátái: É 47°29,960', K 18°51,890') egészítettük ki. A 120 cm mélységű fúrást kézi fúróval mélyítettük, ami 6 db minta elkülönítését és begyűjtését tette lehetővé 0-10, 15-30, 30-50, 50-70, 80-100 és 100-120 cm mélységközökből. Külön-külön kb. 200-400 g mintatömegeket vettünk. A szelvény négy jól elkülüníthető részre tagolható (6. ábra). Felső szürke humuszos réteg kb. 10 cm mélységig tart, ezt követi egy szürkésbarna homokos rész, majd ahogy haladunk a szálkőzet felé vörösesbarna végül világosbarna agyagosabb rétegek következnek.



6. ábra. A PM1 talajfúrás szelvénye

4. Vizsgálati módszerek

A '92-es talajmintákon - kis mennyiségük következtében - nem állt módunkban részletes talajtani és geokémiai vizsgálatokat végezni, így ezeken csak gamma-spektrometriai és SEM mérések történtek. Ezzel szemben az általunk mélyített PM1 fúrás talajszelvényén – ami lényegében referencia mintának tekinthető - általános talajtani, termikus, gamma-spektrometriai és SEM vizsgálatokat is végeztünk.

4. 1. Általános talajtani vizsgálatok

A talajtani vizsgálatokat az ELTE TTK Litoszféra Fluidum Kutató Laboratóriumában végeztük.

4. 1. 1. Néhány talajtani tulajdonság meghatározása

A talajminták mésztartalmának megállapítása céljából 10%-os sósavval lecseppentettük a minta egy részét és a pezsgés minőségéből következtettünk a mésztartalomra:

$$CaCO_3 + 2 HCl = CaCl_2 + CO_2 + H_2O$$
[1]

A kémhatást indikátor papírral vizsgáltuk a desztillált vizes oldatba vitt mintán (2,5:1 arányú oldat), amely az aktív savanyúságról (a talajoldat lehetséges H⁺ koncentrációját fejezi ki) ad információt. A gyúrópróbát a fizikai talajféleség becslése céljából végeztük el. Evőkanálnyi nedves talajból gombócot formálunk, ezután hengert formálunk (kb. 0,5 cm átmérőjűt), végül meghajlítjuk az adott anyagot (Michéli, 2008).

4.1.2. Szitálás

A begyűjtött mintákat szűrőpapíron szárítottuk, majd szitasoron, Fritsch típusú rázógép segítségével hét szemcseméret tartományra bontottuk egy 6 tagú szitasoron. A

bemért mintákat (~190 g) 15 percig tartó száraz szitálással választottuk szét (<0.063 mm, 0.063-0.125 mm, 0.125-0.25 mm, 0.25-0.5 mm, 0.5-1 mm, 1-2 mm, >2 mm). Azért választottuk a száraz szitálást, mert a nedves szitálás során a víz részben kimoshatja a céziumot a talajmintából. A bemérési tömegek és a frakciók szétválasztása után kapott tömegek százalékos mennyiségét kiszámítva szemcseméret eloszlási görbéket szerkesztettünk, amelyeket az eredmények fejezetben mutatunk be.

4. 2. Gamma-spektroszkópia

A gamma-spektroszkópia a gammasugárzást is kibocsátó radioaktív izotópok azon sajátságán alapul, hogy a kibocsátott gamma fotonok energiája jellemző az emittáló atommagra. A radioaktív bomlások után a keletkező új atommagok általában gerjesztett állapotban jönnek létre, amiből az alapállapotba jutás egyik lehetséges módja a gamma-fotonok kibocsátása. A ¹³⁷Cs-ből keletkező metastabil ¹³⁷Ba bomlásakor 661 keV energiájú fotont sugároz ki. Ehhez az energiához tartozó csúcsterületből számolható a vizsgált anyag cézium-tartalma. A méréseket az ELTE TTK Atomfizikai Tanszékén végeztük, GC1520-7500SL típusú germánium félvezető detektorral (HPGe). Az 5cm átmérőjű és magasságú detektor körül kb. 10 cm vastag ólomburkolat található, amelynek az a szerepe, hogy kiszűrje a környezetből jövő természetes és esetleges mesterséges háttérsugárzást. A talajmintákat alumíniumból készült, két csappal ellátott, henger alakú kamrában (8 cm magas, 3,5 cm sugarú kamra) helyeztük a detektor fölé (7. ábra).



7. ábra. A HPGe detektor egy mintatartó kamrával vizsgálat előtt.

A mérés során a gamma-sugárzásnak energiaspektrumát vesszük fel ismert ideig (általában 16 órás mérések történtek). A 8. ábrán látható egy sokcsatornás gamma-spektrométerrel felvett spektrum. A spektrumon jól látható csúcsokat alkotnak a fotoeffektus csúcsai. Ismert energiákat sugárzó izotópokkal meghatározható a csúcshely vs. energia függvény. Ezt vizsgálva azonosíthatunk egy ismeretlen izotópból kijövő energiát a γ -csúcs helye alapján.



8. ábra. Egy jellegzetes talajminta gamma-spektruma a ¹³⁷Cs (valamint ²²⁶Ra és ⁴⁰K) karakterisztikus csúcsával

A spektrum kiértékelés a *teljesenergia-csúcsok alapján* a következő lépésekben történik: energia kalibráció után csúcskeresés, csúcsterület számítás, aktivitás számítás és a végeredmény megjelenítése.

Az aktivitás számításának módja:

$$A = T / (\eta \varepsilon t)$$
^[2]

ahol: A = adott izotóp aktivitása, T = a kiválasztott energián mért csúcsterület, η = ezen az energián lévő csúcshatásfok, ε = a kiválasztott energiájú gammafoton relatív intenzitása, t = a mérési idő.

A kiválaszott energián mért csúcsterületet egy kiértékelő programmal határoztuk meg, amely a kiválasztott csúcsra Gauss-görbét illeszt és a görbe alatti beütések $\pm 3\sigma$ tartományban történő összeadásával számítja a háttér fölötti csúcsterületet. A különböző energiájú gammafotonok relatív intenzitása a NUCLIDES 2000 programból származik. A hatásfok megadja, hogy a sugárforrásból kibocsátott, adott energiájú összes gamma fotonból mennyi kerül regisztrálásra a teljesenergia csúcsban. Ez azonban nem 100% a következő tényezők miatt:

- a mintában történő önelnyelődés,
- ha más irányba indul el a foton és nem a detektorban nyelődik el,
- a detektor irányába indul el a foton de áthalad rajta (detektor anyagának hatásfoka).

A hatásfok számításához a következő adatokra van szükség:

- minta magassága a mintatartóban
- minta sugara a mintatartóban
- minta detektortól való távolsága
- milyen energiá(k)ra szeretnénk számolni a hatásfokot
- minta molekulatömege
- minta sűrűsége
- molekulában lévő elemek rendszáma és darabszáma

A vizsgált mintáknak különböző a tömegük, valamint összetételi különbözésükből eredően eltérő átlagrendszámmal rendelkeznek. Mivel nem ismerjük a talajminták pontos kémiai összetételét, a rendszám tekintetében egy átlag értékkel (13,63) számoltunk, amelyet Condie (1993) által meghatározott felső kontinentális kéreg átlagos elemösszetételére (2. táblázat) számítottunk (in http://earthref.org/cgi-bin/er.cgi?s=germ-s0-main.cgi).

SiO ₂	64,8
TiO ₂	0,7
Al ₂ O ₃	16,9
FeOT	5,67
MgO	2,86
CaO	3,63
Na ₂ O	1,14
K ₂ O	3,97
P_2O_5	0,13
Összesen	99,8

2. táblázat. A kontinentális felsőkéreg átlagos elemösszetétele tömeg%-ban Condie (1993) nyomán (in http://earthref.org/cgi-bin/er.cgi?s=germ-s0-main.cgi)

Az aktivitás számításához keresett hatásfokot, ami az átlagrendszám rögzítése után már csak a minták magasságától függ, minden minta esetében ugyanabból az egyenletből számítottuk ki. (9. ábra exponenciális egyenlete). Ezt az egyenletet úgy kaptuk, hogy az általunk kiszámolt átlagrendszámmal különböző magasságokra szimuláltuk a hatásfokot és exponenciális egyenest illesztettünk a pontokra. Ha a magasság értékeket behelyettesítjük ebbe az egyenletbe (y=0,0535 $e^{-0,4072x}$) könnyen kiszámíthatjuk a különböző mintákra érvényes hatásfokokat.



9. ábra. A hatásfok számításának egyenletét tartalmazó diagram, a hatásfok magasságfüggésének számítása nyomán

4.3 Termikus vizsgálatok

A termikus vizsgálatok a CEMKUT Cementipari Kutató-fejlesztő Kft-nél egy MOM Q 1500-D gyártmányú derivatográfon készültek. A készülék a hőmérséklet (T) változásának függvényében regisztrálja a tömeget (TG), a tömegváltozás sebességét (DTG), valamint a minta és a referenciaanyag közötti hőmérsékletkülönbséget (DTA), ezáltal minőségi és mennyiségi analízis végezhető.

Különböző vegyületekben és többkomponensű rendszerekben hő hatására lejátszódó kémiai reakciók és fizikai átalakulások eredményeként a rendszer belső hőtartama (energiája) megváltozik, amelyet endoterm vagy exoterm folyamat kísér. Ezek a hőhatások differenciál termikus analízissel (DTA) mutathatók ki (Nemecz, 1970). A lineáris hőmérsékletprogramozás a következő összefüggés alapján teszi lehetővé az időbeli változás követését:

$$T = T_0 \pm \beta^* t$$
[3]

ahol T₀: a mérés kezdeti hőmérséklete, T: a t időpontban mért hőmérséklet, β: felfűtési sebesség (°C/perc).

A hőmérséklet változása során minden rendszer a legstabilabb állapot elérésére törekszik, ami stabil kristályszerkezet vagy kis energiájú állapot kialakulását eredményezi, ebből következik, hogy egy referencia minta segítségével meghatározható az átalakulási hőmérséklet. A hőmérséklet különbség a kemencetér (az inert minta) hőmérsékletének függvényében regisztrálható. A mennyiségi elemzés relatív hibája minimum ± 10 %. Az entalpiaváltozáson és a halmazállapot-változáson kívül a készülék alkalmas a minta tömegváltozásának kimutatására (TG) a hőmérséklet függvényében. A termogravimetria görbe alapján sztöchiometrikus, illetve százalékszámítások végezhetők. A tömegváltozással járó folyamat az alábbi összefüggéssel írható le:

$$\alpha = (\mathbf{m}_0 - \mathbf{m}_v) \tag{4}$$

ahol: α = átalakulási hányad, M₀ = a minta lemért tömege, M_v = a minta maradék tömege, M = a minta aktuális tömege

A mérést a mérleg érzékenysége szabja meg, általában \pm 1-3 % valódi érték körüli szórás elérhető. A TG görbe idő szerinti deriváltja, a DTG görbével kis tömegváltozással járó és egymást szorosan követő reakciók kísérhetők figyelemmel. A TG-jel kiértékelés nehézséget jelent, ha a mintában egyidejűleg több tömegváltozással járó folyamat játszódik le, amelyek részben átfedik egymást. Ez kiküszöbölhető, ha a DTG görbét matematikai művelettel állítjuk elő (CK HSZ 101, 2007).

4. 4 Pásztázó elektronmikroszkópos elemzés (Scanning Electron Microscope - SEM)

A SEM vizsgálatokat az ELTE TTK Kőzettani és Geokémiai Tanszék Amray 1830 I/T6 tipusú, EDAX PV 9800 energia diszperzív röntgen-spektrométerrel felszerelt pásztázó elektronmikroszkópján végeztük. Az elemzések során 20 kV-os gyorsító feszültséget alkalmaztunk, a primer elektronáram pedig 1-2 nA közötti volt. A vizsgálathoz a preparátumot vákuumgőzölő segítségével 20 nm vastagságú szénréteggel vontuk be, hogy megfelelő vezetőréteg alakuljon ki a vizsgálandó minták felületen.

A műszerrel kétféle kép készítésére van lehetőség: 1) szekunder elektron kép, ami a felületről ad információt és 2) visszaszórt elektron kép, amely az átlagos rendszám függvényében ad sötét (kis rendszám) vagy világos (nagy rendszám) árnyalatot. A mikroszkóp az energiadiszperzív röntgenspektrométer segítségével röntgen-spektrumokat tud felvenni az egyes elemzési pontokról. Ezek segítségével meghatározható az egyes pontok minőségi elemösszetétele, mivel a különböző elemek az elektronnyaláb hatására karakterisztikus röntgensugárzást bocsátanak ki, amelyek energiája jellemző a kibocsátó elemre.

5. Vizsgálati eredmények

5.1 Talajtani

5. 1.1. Néhány talajtani tulajdonság

A PM1 talajfúráson a gammaspektroszkópiai adatok alapján a felső három talajmintán végeztünk pedológiai vizsgálatokat.

A PM1 fúrás talajszelvényére jellemző, hogy többé-kevésbé homogén, laza, száraz állagú, színe szakaszonként egységes. A makroszkópos megfigyelések szerint a talaj felső része (0-10 cm) szürke színű, morzsás, amelyben a növényi és állati maradványok (gyökér, szár, levél, termés, kitinpáncél, stb.) felismerhetők, továbbá limonitos szemcsék fordulnak elő. Megcseppentve 10%-os sósavval nem pezseg, azonban desztillált vízben oldva serceg, ami gyengén savas kémhatásra utal. A 15-30 cm közötti mélységből származó minta szürkésbarna színű, kevesebb szerves anyagot tartalmaz, nem pezseg és kémhatása semleges. A gyúrópróba során a talajból gombócot lehetett képezni, azonban ha a formált hengert meghajlítottuk, akkor az szétesett, ami arra utal, hogy a fizikai talajféleség vályog. A 30-50 cm közötti talaj vörösesbarna színű, ami vas-és alumínium-hidroxidok jelenlétére utal. Az előbbi mintával azonos tulajdonságokat tapasztaltunk a kémhatást és a mésztartalmat tekintve.

5. 1. 2. Szitálás, szemcseméret-eloszlás

Az általunk fúrt PM1 szelvényből származó legfelső három talajmintát (PM11= 0-10 cm, PM12=15-30 cm, PM13=30-50 cm) szitáltuk le szárazon (3. táblázat). E szerint maximálisan 0,6 % hibát – az anyagveszteségből - követtünk el a szitálás során, ami elhanyagolható.

A szemcsestatisztika (10. ábra) alátámasztja feltevésünket, hogy a fizikai talajféleség valóban vályog, mert a homok (2-0,063 mm) mennyisége 35-38 % közötti, és a <0,063 mm frakció 16-18 %, ami a vályog jellegzetessége (Stefanovits, 1999).

Minta	PM11 (g)	PM12 (g)	PM13 (g)
Szitált tömeg (g)	189,55	192,20	191,40
>2 mm	29,25	27,32	15,24
2-1 mm	13,56	19,37	16,78
1-0,5 mm	18,45	22,17	23,50
0, 5-0, 25 mm	12,80	16,87	25,48
0, 25-0,125 mm	42,85	29,98	32,04
0,125-0,063 mm	40,41	41,31	42,39
<0,063 mm	31,07	34,17	34,84
Összesen a szitált			
frakciók tömege(g)	188,38	191,20	190,27

3. táblázat. A PM1 talajszelvényből vett minták szitált adatai (PM11= 0-10 cm, PM12=15-30 cm, PM13= 30-50 cm)



10. ábra. A PM1 talajszelvényből származó, talajminták szemcsefrakcióinak tömeg%-os eloszlása, függőleges tengelyen a minták származási mélységének feltüntetésével. PM11=0-10 cm, PM12=15-30 cm, PM13= 30-50 cm

5. 2 Gammaspektroszkópia

Gammaspektroszkópia módszerével meghatároztuk a 31 db '92-es fúrás rétegeinek (sok esetben az összes, míg máshol idő hiányában, csak a 0-30 és 0-60 cm mélységű mintáknál) valamint az általunk mélyített (PM1) talajfúrás rétegeinek a cézium tartalmát Bq/kg-ban. A PM1-es referencia fúrás esetén a felső 0-10 cm-es részt leszitáltuk és a frakciókban külön megmértük a cézium aktivitást. Az eredményeket a 4. és 5. táblázat tartalmazza. A '92-es talajminták esetében csak a felső rétegben (0-30cm), a PM1 referenciafúrásban a PM11 (0-10 cm), a PM12 (15-30 cm) és a PM13 (30-50 cm) mintákban mértünk ¹³⁷Cs-t (11. ábra).



11. ábra. A PM1 refenciafúrás talajszelvényének ¹³⁷Cs aktivitása a mélység függvényében

Minta sorszáma (és	¹³⁷ Cs aktivitás	Hiba	
helye)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	
E16 /Ráckeve/	4,251	0,587	
E02 /Gödöllő/	Х	Х	
E04	Х	Х	
E07	32,416	1,24	
E08	8,268	0,658	
E5	1,15	0,721	
I08 /Budakeszi/	12,71	0,673	
I20	10,331	0,619	
I23	11,6	0,743	
I24 /Vácszentlászló/	6,172	0,626	
125	5,636	0,589	
I26	4,49	0,583	
I31	3,224	0,65	
I32	2,506	0,55	
I33	2,37	0,434	
I34	3,282	0,552	
135	Х	Х	
I36	2,502	0,835	
I41 /Bugyi/	2,746	0,403	
I42 /Alsónémedi/	2,246	0,448	
I43 /Ócsa/	2,89	0,446	
I46	2,534	0,44	
I49 /Apaj/	X	Х	
I57	3,204	0,606	
I58	2,706	0,57	
159	X	Х	
I61	2,816	0,658	
I63 /Abony/	3,013	0,649	
I67	3,416	0,555	
S76	4,505	0,61	
S79	Х	Х	

4. táblázat. A '92-es fúrások felső 30 cm-ében mért ¹³⁷Cs aktivitás (Az x-el jelölt minták esetében nem mértünk ¹³⁷Cs-et)

A 12. ábrán láthatjuk a '92-es minták felső rétegének (0-30 cm) cézium aktivitás értékeiből kapott térképet, amit Surfer programmal rajzoltunk meg. Ez a térkép túlbecsüli a nagy aktivitású terület nagyságát, amelynek oka az interpolációs eljárás és a relatív kis mintasűrűség.



12. ábra Pest megyére vonatkozó cézium térkép a '92-es minták felső rétegének (0-30 cm)¹³⁷Cs (Bq/kg) értékeiből

A referencia minta (PM1) legfelső részéből (0-10 cm) végzett frakciónkénti mérések esetében, minden tartományban kimutatható a ¹³⁷Cs. A legtöbb 0,25 -0,5 mm és a legkisebb (<0,063 mm) szemcseméret tartományban. Az eredményeket 5. táblázatban láthatjuk.

Szemcsetartomány	¹³⁷ Cs (Bq/kg)	Hiba (Bq/kg)	Minta tömege (g)
x>2mm	11,888	1,762	29,25
2mm>x>1mm	26,652	3,676	13,56
1mm>x>0,5mm	30,092	3,343	18,45
0,5mm>x>0,25mm	43,379	2,489	12,80
0,25mm>x>0,125mm	22,442	0,959	42,85
0,125mm>x>0,063mm	22,339	1,710	40,41
x<0.063mm	39,803	2,499	31,07

5. táblázat. A PM1 refenciafúrás felső részének szitált frakcióin mért ¹³⁷Cs aktivitása Bq/kg-ban

5. 3 Termoanalízis

Az elemzések célja volt derivatográf segítségével végzett mérésekkel meghatározni a talajalkotókat. A mérés a PM1 referencia fúrás legfelső mintájának (0-10 cm) száraz szitálással elválasztott frakcióin történt. A vizsgálatokat az alábbi kísérleti paraméterek mellett végeztük: fűtési sebesség: 10 °C/perc, hőmérséklettartomány: 20-1000 °C, érzékenység: DTA 1/10, TG 200, DTG 1/10, atmoszféra: levegő. A mintatartó tégely korund volt. A referencia minta 1200 °C-on kiizzított Al₂O₃. A készüléket 2006. május 22-én kalibrálták. A vizsgált minták termikus elemzésének tájékozató eredményeit a 6. táblázat tartalmazza:

Minta	Bemérés	Összes veszteség	Adszorbeált víz	FeOOH ⁺ szerves anyag	Agyagásvány (kaolinitre számolva)	Kalcit	Összes veszteség
Mm	mg	mg	%	%	%	%	%
>2	500	38,24	1,42	16	21,3	0,5	7,65
1-2	500	39,41	1,77	17,99	17,6	0,5	7,88
1-0,5	500	49,07	1,84	24,2	21,01	0,9	9,81
0,5-0,25	500	70,0	2,26	34,1	34,9	0,8	14
0,25-0,125	500	34,85	1,48	16,85	14,8	0,5	6,97
0,125-0,063	500	27,04	1,26	11,7	12,4	0,4	5,41
<0,063	500	41,65	1,81	16,4	22,1	0,7	8,33

6. táblázat. A PM1 talajszelvény legfelső rétegének szitálással elválasztott frakcióin számolt adatok a derivatogramok elemzése alapján

A derivatogramok minőségi kiértékelése a TG-és DTG-görbék együttes vizsgálatával történt az alábbi munkák felhasználásával: Földváriné (1958) és Földvári (1986).

A mintákból szerves anyagot, agyagásványt, kalcitot és vas-oxihidroxidot határoztunk meg. A termikus görbéket négy fő szakaszra lehet bontani (13. ábra). Az első széles endoterm csúcs 115-130 °C között az agyagásványok, a szervesanyag és a különböző kolloidok felületén adszorbeált, illetve rétegközi vizek távozását jelzi, amely általában két lépcsőben valósul meg. A tömegveszteség 1.26-2.26 %. A DTA görbe második szakasza 230-490 °C között összetett exoterm és endoterm folyamatokra utal. A görbének itt két-három maximuma is van, a csúcs széles, gyakran aszimmetrikus, kis törésekkel. Ezen a szakaszon megy végbe a szervesanyag oxidációja, amely a vasoxihidroxidok vízvesztésének endoterm, illetve a Fe²⁺ oxidációjának exdoterm folyamataival lehet átfedésben. A tömegvesztés 11.7-34.1 % közötti. A DTA görbe harmadik szakasza az 550-570 °C hőmérséklettartományba eső kis endoterm csúcs az agyagásványok szerkezeti OH-vesztését reprezentálja. A negyedik szakaszban egy 800 °C körüli kis endoterm csúcs jelzi a kalcit jelenlétét. A termikus vizsgálat után visszamaradt anyag vöröses barna színű. Ez a vastartalmú ásványok (vasoxihidroxidok) oxidációjára, és/vagy nontronitos összetételű szmektit jelenlétére utalhat.



13. ábra. A <0,063 mm frakció termoanalitikai görbéi. A DTA görbe 103,3 °C-nál jelentkező endoterm csúcsa jelzi az adszorptív víz eltávozását, majd széles exoterm csúccsal jelenik meg a szervesanyag és a FeOOH vízvesztése. 568,1 °C-nál az agyagásványok vesztik el szerkezeti vizüket, majd 946,4 °C-nál újabb vízvesztés jelentkezik, ahol az exotem csúcs leszálló ágában mullit képződik.</p>

5. 4 Pásztázó elektronmikroszkópos elemzés (Scanning Electron Microscope - SEM)

Az I08 és E07-es fúrások (5. ábra) 5-15 ill. 5-20 cm-es rétegeiből, amelyeknél a legmagasabb cézium aktivitást mértük és a PM1-es referncia fúrás felső rétegéből (0-10

cm) (5. ábra) sztereomikroszkóp segítségével kiválogatott sötét szemcséket vizsgáltuk, pásztázó elektronmikroszkóppal. Az elemzés mindhárom minta szemcséi esetén nagy szervesanyag tartalmat mutatott, valamint K-tartalmú anyagásványok jelenlétét jelezte. A 14. ábrán látható aggregátum nagy szervesanyag- és agyagtartalomról árulkodik, amelyet alátámasztanak a szemcséből felvett spektrumok (15. és 16. ábra).



14. ábra. Az E07-es fúrásból származó aggregátum szekunder elektron képe. A sötétebb (kisebb átlagrendszámú) részek szervesanyag, és agyagásvány tartalmat jeleznek



15. ábra. Az E07-es fúrásból származó egyik szemcse káliumtartalmú agyagásvány spektruma



16. ábra. Az I08-as fúrásból származó egyik szemcse szervesanyag spektruma

6. Az eredmények értelmezése

6. 1 A ¹³⁷Cs-térkép jelentősége

A 31 fúrás felső rétegének elemzése alapján készült térkép (10. ábra) mutatja a ¹³⁷Cs térbeli eloszlását, amely hasonló más szerzők által leírtakhoz (Szatmáry és Aszódi, 2005), miszerint a Csernobil utáni radioaktív felhő - amelynek déli része érte el Magyarország területét - főleg a dunántúli, budapesti és észak-magyarországi részeket szennyezte be. Az ország többi részén kisebb, de nem nulla többletaktivitás volt mérhető. Az általunk kapott nagy aktivitású terület a vizsgált Pest megye legnyugatibb részén található, tehát jelzője lehet a nyugatról érkező radioaktív csóvának.

6. 2. A ¹³⁷Cs-változás a szemcseméret, az agyagásvány- és a szervesanyag tartalom függvényében

Vizsgálataink azt sejtették, hogy a ¹³⁷Cs megjelenése különös összefüggésben van a szemcsemérettel, amint az a 15. ábrán látszik. A radionuklidok megkötődésének szemcseméret függését mások is vizsgálták (Chapell, 1998). A tanulmányok szerint a kisebb szemcseméret esetén a nagyobb fajlagos felület elősegíti a ¹³⁷Cs megkötődését és a kationcserét. Azonban a vizsgálataink szerint 0,25-0,5 mm közötti szemcsetartomány esetén tapasztaltuk a legnagyobb ¹³⁷Cs aktivitást (43,38 Bq/kg). Ezt követi a legkisebb frakció (<0,0063 mm) 39,8 Bq/kg-mal, majd a 0,5-1 mm közötti tartomány (30,1 Bq/kg). Az 1-2 mm közötti szemcsék esetén 26,7 Bq/kg. A 0,25-0,125 mm és a 0,125-0,063 mm közötti frakcióknál közel azonos értékeket kaptunk (22,4 Bq/kg, 22,3 Bq/kg). A legkisebb ¹³⁷Cs tartalmat a legnagyobb frakcióban mértük (11, 9 Bq/kg) (17. ábra).



17. ábra. A ¹³⁷Cs koncentráció és a szemcseméret összefüggése

Eredményeink csak részben magyarázhatók a szemcseméret függéssel a ¹³⁷Csmegkötődés, ami egy komplex folyamat és más tényezők (pl. pH) is befolyásolják a ¹³⁷Cs koncentrációját, amint Larsson (2008) megállapította. Ezt támasztják alá Bihari és Dezső (2004) munkássága nyomán kapott cézium aktivitás értékek, amelyek hasonló képet mutatnak (18. ábra) az általunk kapott eredményekkel (17. ábra), bár mi száraz szitálást alkalmaztunk, míg Bihari és Dezső (2004) nedves szitálással bontották frakciókra a talaj felső, 0-10 cm-es részét.



18. ábra. Bihari és Dezső (2004) által meghatározott ¹³⁷Cs aktivitás a szemcseméret függvényében

Amint Larssen (2008) és Ritchie et al. (2004) is rámutatott, a cézium megkötődésben az agyagásvány-, és a szervesanyagtartalom is jelentős szerepet játszhat. E kapcsolat vizsgálatára végeztünk termoanalitikai analízist a PM1 talajfúrás felső részének (0-10 cm) szitált frakcióin és az eredményeket összefüggésbe hoztuk a gammaspektroszkóp vizsgálatoknál kapottakkal. Ezt mutatja a 19. ábra, ahol nagyobb az agyagásvány- és a szervesanyag (+FeOOH)-tartalom, ott nagyobb ¹³⁷Cs koncentráció értékeket mértünk. A legnagyobb aktivitást 0,5-0,25 mm közötti tartományban észleltünk, ahol a legnagyobb az agyagásványtartalom a többi frakcióhoz viszonyítva. Ezt követi az agyagásványtartalom és ¹³⁷Cs aktivitás szempontjából a legkisebb frakció (<0,063 mm). Kivételt képez a legdurvább frakció (>2 mm), amelynél a nagy szervesanyag- és agyagásványtartalom mellett kis ¹³⁷Cs aktivitás jelenik meg. Ugyanakkor figyelembe kell venni, hogy nagyobb szemcseméret esetén kisebb a fajlagos felület, mint a kisebb szemcseméret esetén.



19. ábra. A ¹³⁷Cs aktivitás és ásványi alkotók kapcsolata a PM1-es fúrás szemcsefrakcióiban. A diagram tartalmazza a mért ¹³⁷Cs koncentráció hibáját

Ha megvizsgáljuk a mért aktivitás a szervesanyag- és az agyagtartalom közötti összefüggést a következő diagramot kapjuk (20. ábra), amelyen jól látszik a közöttük fennálló korreláció, ami mindkét esetben 0,66. (A szervesanyag+FeOOH és az agyagásvány közötti korreláció értéke: 0,89.)



20. ábra A PM11 minta ¹³⁷Cs aktivitása, agyagásvány- és szervesanyag tartalma közötti összefüggés

6. 3. ¹³⁷Cs-mélység szerint

A 7. táblázatból látszik, hogy a legnagyobb ¹³⁷Cs aktivitást a talaj legfelső szintjében mértük, amely fokozatosan csökken a mélységgel, 50 cm alatt pedig nem találtunk ¹³⁷Cs-t a gammaspektroszkóp mérések során (10. ábra) Ez is bizonyítja, hogy a cézium vándorlása a talajban nagyon lassú, valamit talajtípus függő, ami magyarázható a talaj összetételével és éghajlati zonalitásával (Andrello és Appoloni, 2003, Poreba, 2003, Larsson, 2008).

	Cézium tartalom (Bq/kg)	Hiba (±Bq/kg)
PM11	28,6	1,1
PM12	13,8	0,6
PM13	5,4	0,7
PM14	0	0
PM15	0	0
PM16	0	0

7. táblázat. A fúrt minták mélység szerinti ¹³⁷Cs tartalma (a hiba feltüntetésével)

7. Összefoglalás

- 1. Elkészült a részletes ¹³⁷Cs aktivitás felmérés Pest megyére vonatkozóan talajmintákból.
- A felmérés azt mutatja, hogy a ¹³⁷Cs mesterséges izotóp a mai napig kimutatható Pest megyében.
- 3. Két minta esetében nagyobb ¹³⁷Cs tartalmat tapasztaltunk, ez alapján mélyítettünk egy talajfúrást, amelyben mélység szerint vizsgáltuk a ¹³⁷Cs változását. A ¹³⁷Cs 50 cm-ig kimutatható, ami arra utal, hogy a ¹³⁷Cs lassan mozog a talajban.
- 4. A PM1 minta legfelső részének (0-10 cm) szitált frakcióiban HPGe detektorral meghatároztuk a ¹³⁷Cs aktivitást és ezt összevetettük a szitált frakciókon végzett termoanalízissel kapott eredményekkel:

a. A ¹³⁷Cs megjelenése az egyes frakciókban összefüggést mutatott az agyagásványés a szervesanyag tartalommal,

b. A legnagyobb aktivitást a 0,25-0,5 mm és a 0,063 mm alatti frakciókból kaptuk, ahol nagyobb volt az agyagásvány és a szervesanyag mennyisége.

Köszönetnyilvánítás

Dolgozatunk elkészítéséhez nyújtott nélkülözhetetlen segítségükért szeretnénk köszönetet mondani témavezetőinknek: Szabó Csabának és Horváth Ákosnak. Köszönettel tartozunk Csorba Ottónak a gammaspektroszkópiai eredmények kiérétkelésében nyújtott segítségéért, Laczkó Lászlónak a termikus vizsgálatok lehetőségének megvalósításáért, valamint Bendő Zsoltnak a SEM képek készítéséért.

Köszönet illeti a Litoszféra Fluidum Kutató Laboratórium valamennyi tagját támogatásukért és lelkesedésükért.

Demonstrability of ¹³⁷Cs in soil samples of Pest County

¹³⁷Cs is a radioactive isotope that can arise from the nuclear weapon fallout and the Chernobyl accident. ¹³⁷Cs has a respective long half life (30 year), thus it can detect in the soil nowadays. The ¹³⁷Cs distribution has been studied from 31 sampling sites in Pest County. Soil samples have been collected from soil drilling in 1992. We measured the activity of ¹³⁷Cs by gamma spectroscopy and found that only the upper layer of soil (0-30 cm) contain ¹³⁷Cs. These activity values were illustrated on a map. We found salient values (12 and 32 Bq/kg) compared to the average activity (2-3 Bq/kg) in two cases at the western foot of Buda Mountains, therefore we drilled a reference boring near by this area, and made a detailed research (gamma spectroscopy, derivatograph and scanning electron microscope) on these samples. We found relationship between the ¹³⁷Cs distribution according to the depth and the pedologic parameter of soils (clay mineral and organic material content, as well as grain size).

Irodalomjegyzék

- ALMGREN, S. ÉS ISAKSSON, M. (2006): Vertical migration studies of ¹³⁷Cs from nuclear weapons fallout and the Chernobyl accident
- ANDRELLO, A.C. ÉS APPOLINI, C.R. (2004): Spatial Variability and Cesium-137 Inventories in Native Forest Brazilian Journal of Physics, vol. 34, no. 3A
- BIHARI, Á. ÉS DEZSŐ, Z. (2004): Examination of the effect of particle-size on the radionuclide-content of soils
- BUNZL, K., SCBMMAEK, W., ÉS BEHI, M. R. (1997): Sequential extraction of fallout radiocesium from the soil: Small scale and large scale spatial variability, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Voi. 226, Nos 1.-,2, 47-J3
- CARBOL, P., ITTNER, T. ÉS SKALBERG, M. (1988): Radionuclide Deposition and Migration of the Chernobyl Fallout in Sweden
- CHAPELL, A. (1999): The limitations of using ¹³⁷Cs for estimating soil redistribution in semi-arid environments Geomorphology 29 1999.135–152
- CK HSZ 101 (2007): CEMKUT Házi Szabvány, Termoanalitikai vizsgálat az anyagok hőkezelés során bekövetkező tömeg- és entalpiaváltozásának meghatározására (derivatográfia); Budapest
- DUBOIS, G., ÉS BOSSEW, A. P. (2003): Chernobyl ¹³⁷Cs deposition in Austria: analysisof the spatial correlation of the deposition levels
- EAPEN, J. ÉS NARAYANAN, N. (1971): Gross and Subcellular Distribution of Cesium-137 in Pigeon (Columba livia) Tissues with Special Reference to Muscles, Journal of Radiation Research Vol.12, No.2, pp.51-55
- ERIKSSON, J. ÉS SIMONSSON, M. (2005): Wiklanders Marklara Studentliteratur, Lund, pp. 67
- EPA (Environmental Protection Agency) (2002): Facts About Cesium-137, 2002 jul, Environmental Protection Agency
- FILEP, Gy. (1999): A talaj fizikai tulajdonságai In Talajtan (Stefanovits Pál), Mezőgazda Kiadó, Budapest, pp. (131-137)

- FIZIKAI SZEMLE 1992/10. 375.o. A Nemzetközi Csernobil vizsgálat; A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség kiadványát Haiman Ottó - ELTE Atomfizikai Tanszék fordította.
- HAYAKAWA, H. (1995): A légköri nukleáris kísérletek következményei, Institute of Public Health, Radioactivity Monitoring Section, Fukui Prefecture, Japan, Fizikai Szemle, 1995/6. 186.o.
- FÖLDVÁRI, M. (1964): A földtani kutatásban alkalmazott termoanalitikai módszerek, Módszertani Közlemények, 9/1, MÁFI kiadvány, 86 p.
- FÖLDVÁRINÉ, V. M. (1958): A differenciális termikus elemzés szerepe az ásványtanban és a földtani nyersanyagkutatásban, Műszaki Könyvkiadó, Budapest
- FRISNYÁK, S. (1984): Pest megye In Budapest és a megyék földrajza (ZOLÁN, Z.), Tankönyvkiadó, Budapest, pp. (247-267)
- HARRISON, J. ÉS MCNEILL, K. G. (1963): Effect of Chlorothiazide on Cesium-137 Excretion in Human Subjects; Can Med Assoc J. 1963 December 21; 89(25): 1266– 1269.
- IVANOVA, Y. A., LEWYCKYJB, N., LEVCHUKA, S. E., PRISTERC, B. S., FIRSAKOVAD, S. K., ARKHIPOVE, N. P., ARKHIPOVE, A. N., KRUGLOV, S. V., ALEXAKHINF, R. M., SANDALLSG, J. ÉS ASKBRANTH, S. (1997): Migration of ¹³⁷Cs és 90Sr from Chernobyl Fallout in Ukrainian, Belarussian and Russian soils
- KABAI, É. (2003): Hosszú felezési ideju radionuklidok viselkedésének tanulmányozása a talaj-növény rendszerben
- KANYÁR, B. (1999): A tápláléklánc szennyeződése radioaktív anyaggal, Fizikai Szemle, 1999/6 2410
- LARSSON, M. (2008): The influence of soil properties on the transfer of 137Cs from soil to plant
- MICHÉLI, E. (2008): Talajtani gyakorlatok 1,2 (SzIE, Mezőgazdasási-és Környezettudományi Kar, Talajtani-és Agrokémiai Tanszék)
- MICHÉLI, E. (2008): Talajtan 3. előadás (SzIE, Mezőgazdasási-és Környezettudományi Kar, Talajtani-és Agrokémiai Tanszék)

- NEMECZ, E. (1970): Derivatográfia. In Ásványtani praktikum 2. (Sztrókay-Grasselly-Nemecz-Kiss), Tankönyvkiadó, Budapest, pp. 47-52
- PERSSON, H. (2008): Migration of radiocaesium in six Swedish pasture soils after the Chernobyl accident
- PORÊBA, G., BLUSZCZ, A. ÉS OENIESZKO, Z. (2003): Concentration and vertical distribution of ¹³⁷Cs in agricultural and undisturbed soils from Chechlo and Czanocin areas, Geochronometria Vol. 22, pp 67-72, 2003 – Journal on Methods and Applications of Absolute Chronology
- RIESEN, T K., ZIMMERMANN, S. ÉS BLASER, P. (1998): Spatial distribution of ¹³⁷Cs in forest soils of Switzerland,
- SMITH, J.T. ÉS BERESFORD, N.A. (2005): Chernobyl Catastrophe and Consequences by J.T. Smith és N.A. Beresford (Praxis, Chichester)
- SOLDAT, J. K., HARR, R. D. (1971): Digital computer code for estimatin regional radiological effects from the nuclear power industry
- SOMLAI, J. (2004): Atomerőművek környezeti hatásai. Radioaktív kibocsátások (Magyar Atomfórum Egyesület)
- STEFANOVITS, P. (1999): A tájak talajviszonyai In Talajtan (Stefanovits Pál), Mezőgazda Kiadó, Budapest, pp. (406-437)
- SZATMÁRI, M. ÉS ASZÓDI, A. (2005): Csernobil: tények, okok, hiedelmek, pp. 110-112
- SZÜCS, L. (1966): Talajviszonyok In Magyarázó Magyarország 200 000-es földtani térképsorozatához (Balogh Kálmán), Magyar állami Földtani Intézet kiadásában, Budapest, pp. (291-295)
- TEHERANI, D. K. (1988): Determination of ¹³⁷Cs and ¹³⁴Cs radioisotopes in VARIOUS mushrooms from Austria one year after the Chernobyl incident, J. RADIOANAL. NUCL. CHEM. LETTERS, 126 /6/ 401-406 /1988/
- YAMAGATA, N. (1962): The Concentration of Common Cesium and Rubidium in Human Body, Journal of Radiation Research, Vol.3 , No.1(1962)pp.9-30
- ZYGMUNT, J., CHIBOWSKI, S. ÉS KLIMOWICZ, Z. (1997): The effect of sorption properties of soil minerals on the vertical migration rate of cesium in soil, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 231, Nos 1 2 (1998) 5 ~62

http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/ http://earthref.org/cgi-bin/er.cgi?s=germ-s0-main.cgi http://www.omegalabs.eu/html/atomenergia.html