Radioaktív anyagok terjedése a környezetben

Tartalom:

1. Alapok: dózisfogalmak, sugárvédelmi szabályozás
2. Radioaktív anyagok transzportja élő szervezetekben
3. Radioaktív anyagok terjedése a levegőben
4. Radioaktív anyagok terjedése vizekben (homogén és heterogén rendszerek)
5. Összetett programok a környezetbe jutott radioaktivitástól származó dózis becslésére

Félévközi dolgozatok: 2022. X. 17. és XI. 28.

Gyakorlat

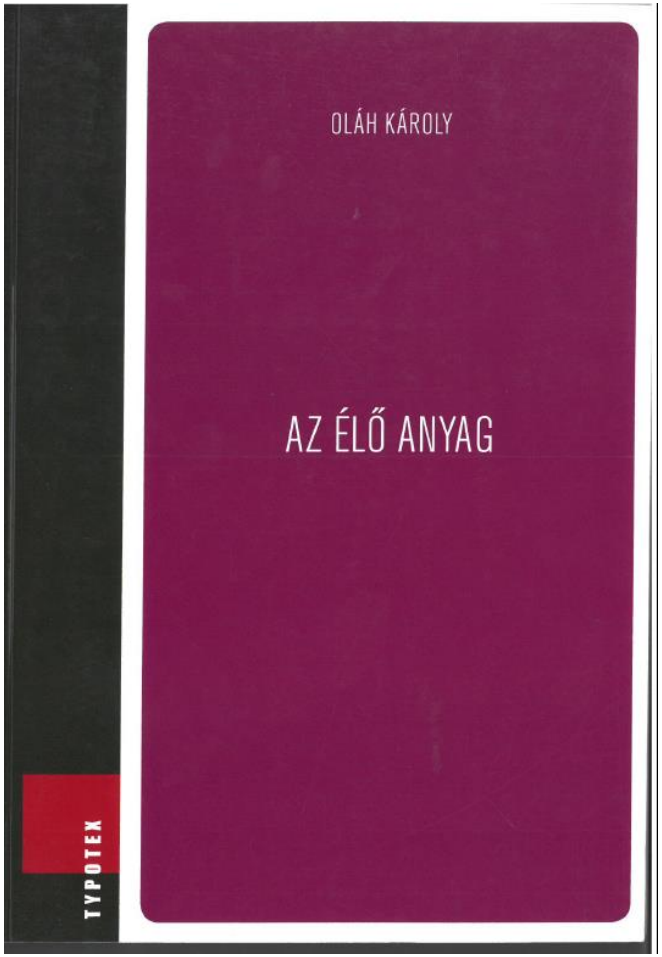
- Irodalmazás: Egy kiválasztott, terjedésszámítási modelleket tartalmazó program alkalmazásai
- Adatok összegyűjtése a program használatához egy adott környezeti terjedési eset modellezéséhez, futtatás, beszámoló előadás készítése
- Beszámoló előadás az utolsó előadási órán (2022. XII. 5.)

Irodalom a felkészüléshez

- Az előadások letölthető prezentációja

https://oktatok.reak.bme.hu/zagyvai/

- Fehér I., Deme S. (szerk.): Sugárvédelem (ELTE Eötvös Kiadó, Budapest, 2010.)
- Fizikai és kémiai alapok (pl.): Oláh K.: Az élő anyag (Typotex kiadó, Budapest 2014.)



Az ionizáló sugárzások forrásai

- Radioaktív anyagot nem tartalmazó berendezések: gyorsítók, röntgengépek – a környezeti terjedés szempontjából érdektelenek
- Összetett nukleáris rendszerek: energiatermelő- és kutatóreaktorok, spallációs források – radioaktív anyagokat bocsáthatnak ki a környezetbe

Természetes és mesterséges radioaktivitás (hulladékok), amely már jelen van a környezetben vagy számolni kell a kijutásával.

Ionizáló sugárzások

Sugárzások: α-, β-, γ- és röntgensugárzás, neutronsugárzás

A közeg kölcsönhatásra képes alkotórészei: elektronok, az atom elektromágneses erőtere, atommag.

A közeg és a sugárzás közötti kölcsönhatás szerint:

- Közvetlenül ionizáló sugárzások: α- és β-részecskék, γ- és röntgen-fotonok – az elektronoknak képesek azok ionizációjához elegendő energiát átadni. Az α és β részecskék kis térfogatban sok elektronnal ütköznek, a fotonok a „szokásos” anyagi méretekben csak elindítják az energiaátadást az első elektron meglökésével.
- Közvetve ionizáló sugárzás: neutron – az atommagokkal végbemenő kölcsönhatások során ionizációra képes részecskék jelennek meg.

Az elektronokkal való ütközés nem minden esetben vezet azok ionizációjára. A sugárzás által több lépésben átadott energia egy jelentős része nem ionizációt, csak gerjesztést eredményez, azaz a közeg termikus energiáját növeli meg.

Az ionizáló sugárzások forrása: radioaktív bomlás

$$dN = -\lambda \cdot N \cdot dt$$

$$A = \left|\frac{dN}{dt}\right| = \lambda N$$

N: bomlásra képes, azonos fajtájú atommagok száma [darab]
λ: bomlási állandó = időegység alatti <u>bomlás valószínűsége</u> [1/s]
t: idő
A: aktivitás [1/s ; Becquerel; Bq]
$T_{1/2}$: felezési idő [s]

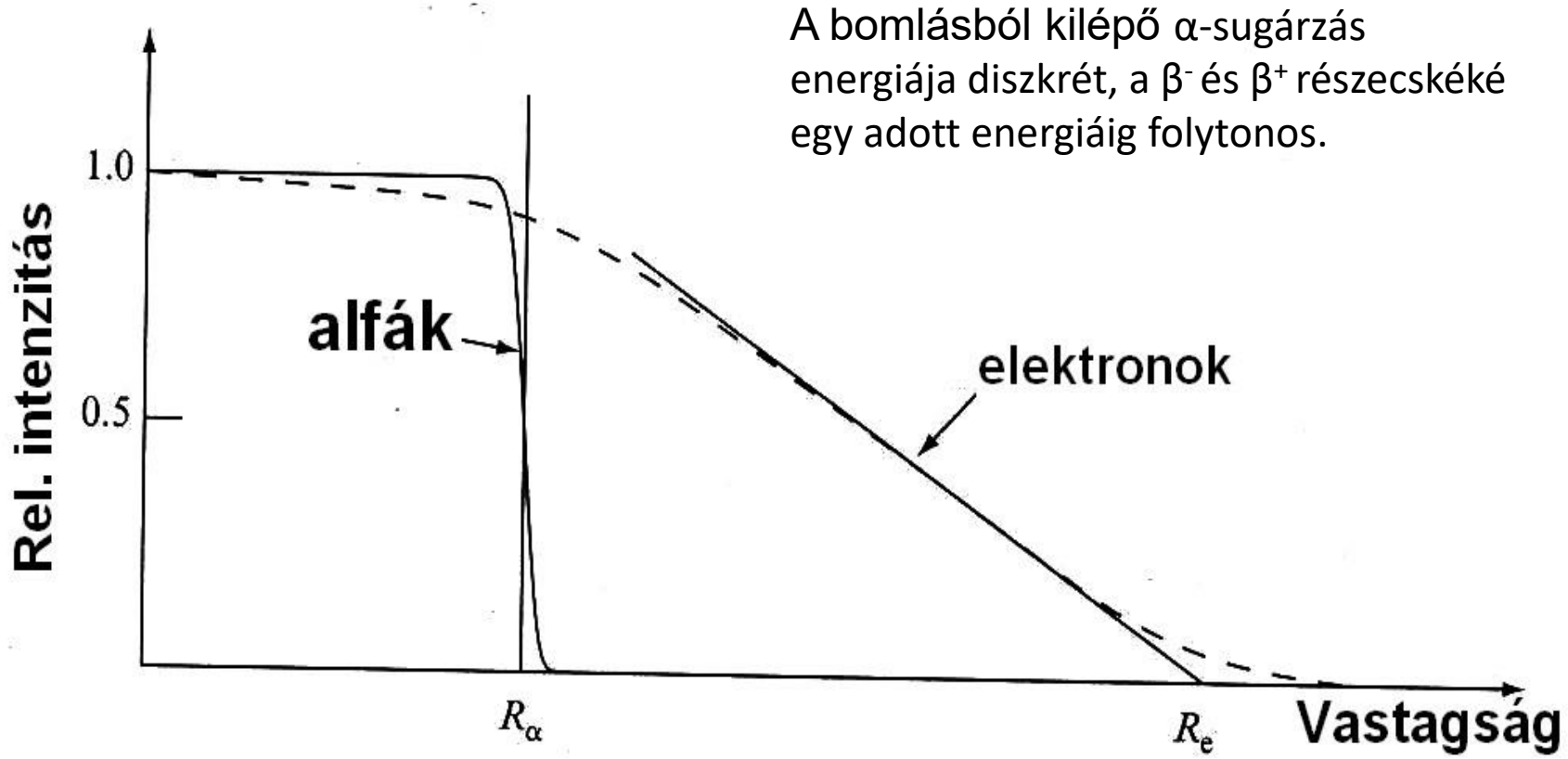
$$N = N_0 \cdot e^{-\lambda t}$$

$$A = A_0 \cdot e^{-\lambda t}$$

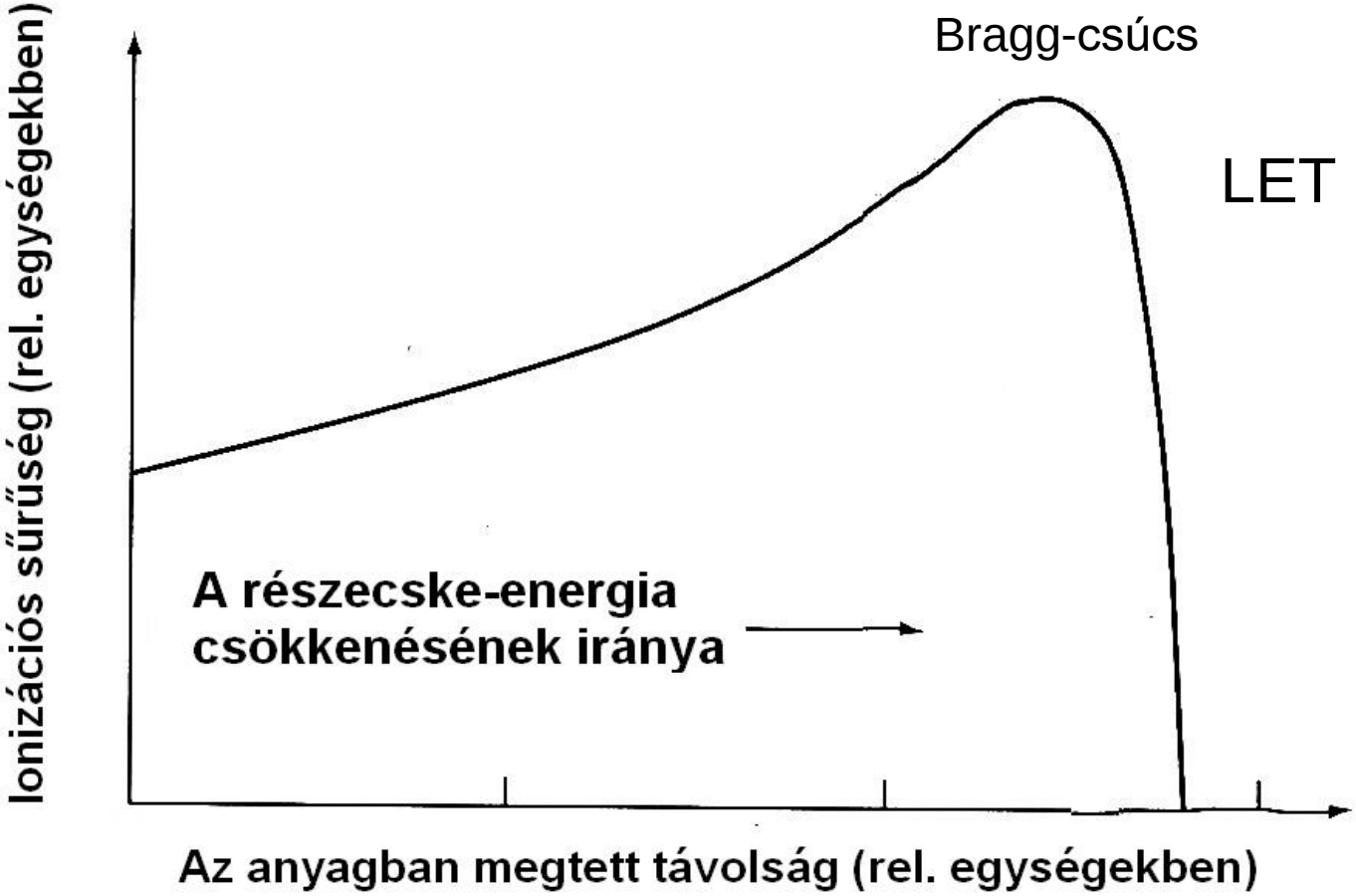
$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

Alfa- és bétasugárzás (gyenge áthatoló képességű részecskesugárzások) elnyelése az anyagban

A bomlásból kilépő α-sugárzás energiája diszkrét, a β^- és β^+ részecskéké egy adott energiáig folytonos.



Lineáris energiaátadási tényező (LET) alfa- és bétasugárzásra



LET = dE/dx

Alfa- és bétasugárzás elnyelése

α-sugárzás LET-értéke vízben: ~ 100 - 200 keV/μm

Energiaátvitel: Coulomb-kölcsönhatás - elektronokkal ionizáció/gerjesztés; hatótávolság vízben <70 μm

β-sugárzás LET-értéke vízben: max. 5 keV/μm; hatótávolság vízben 0,1 - 2 cm

Energiaátvitel:

- elektronokkal ütközés/Coulomb-kölcsönhatás - ionizáció/gerjesztés;
- atomok elektromágneses erőterével: fékezési sugárzás (folytonos röntgensugárzás, energiája a közeg rendszámától is függ)
- Cserenkov-sugárzás: az adott közegben érvényes fénysebességnél nagyobb sebességű elektron látható fényt is kibocsát.

A hatótávolság lényegesen kisebb, mint az energia-átvitelben részt vevő elektronok összes úthossza.

Gammasugárzás elnyelése, gyengítése

Foton energiaátadása részben hullám- részben anyagi természetű rendszernek – „ütközés”

- Elektronnal (ionizáció – többféle kölcsönhatásban)
- Atommagokkal (abszorpció – küszöbreakció, többnyire csak >5 MeV energiánál)
- Atomok elektromágneses erőterével (küszöbreakció, csak >1,2 MeV energiánál) - párkeltés)

Általános törvényszerűség: sztochasztikus (véletlenszerű) kölcsönhatás

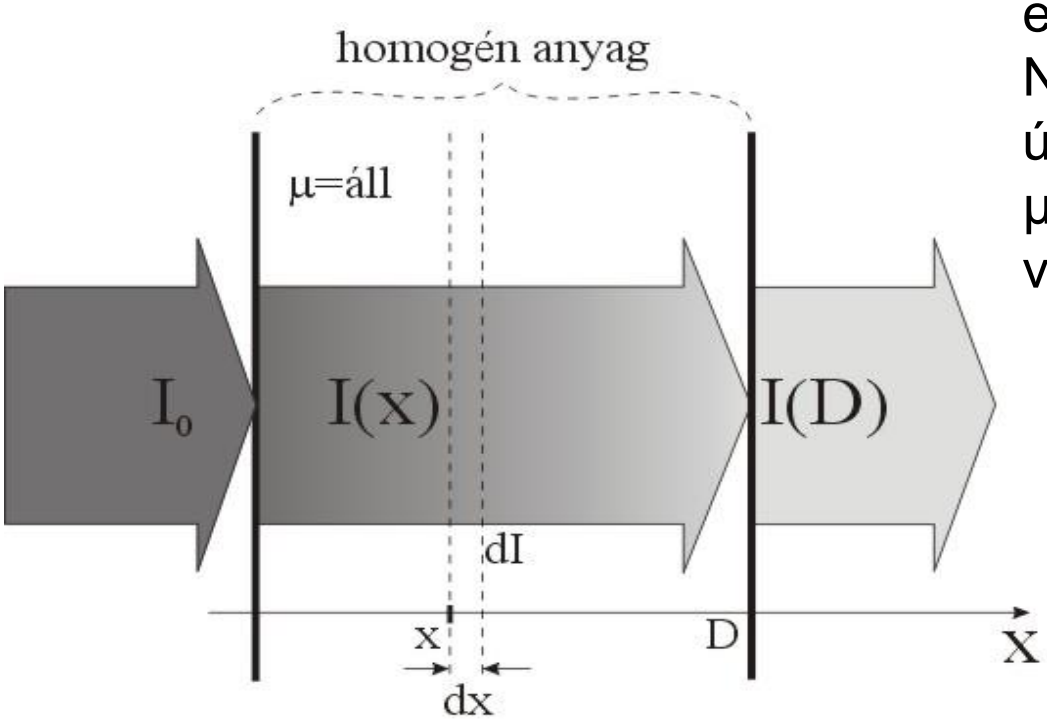
Az energiát átvett elektronok kinetikus energiája:

- További ionizációt okozhat;
- Ionizáció nélküli gerjesztést okozhat;
- Szekunder fotonsugárzás (folytonos röntgensugárzás) keltését eredményezheti.

Gammasugárzás gyengítése

$$dI = -I(x)\,\sigma\,N\,dx$$

I: részecskeáram [darab/s]
σ: kölcsönhatási valószínűség egy „partnerre” [-]
N: partnerek száma egységnyi úthosszon [darab/m]
μ = σ . N = kölcsönhatási valószínűség [1/m]



Integrálás után: általános gyengülési egyenlet

$$I = I_0 \cdot \exp(-\mu x)$$

Párhuzamos sugárnyaláb és azonos kinetikus energia esetére érvényes.

Dózismennyiségek

$$D = \frac{dE}{dm} \approx \frac{\Delta E}{m}\left[\frac{J}{kg}, gray, Gy\right]$$

Elnyelt dózis (fizikai dózis): az anyag tömegegységében elnyelt összes ionizáló sugárzási energia; csak fizikai kölcsönhatásokat foglal magába.
Bármelyik ionizáló sugárzásra értelmezhető.
Csak ionizáló sugárzásra értelmezett, de nem csak az ionizációra fordított energia átadását tartalmazza.
Nem tartalmazza az adott anyagból kilépett (szórt, szekunder) sugárzási energiát.
„Egyesíti” a különböző forrásokból származó energia-beviteleket.

Dózismennyiségek

- A sugárzás forrása és a sugárzásnak kitett személy helyzete szerint: külső vagy belső sugárterhelés
- Időegységre jutó elnyelt dózis = dózisteljesítmény (főként külső sugárterhelésre értelmezik)

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \text{ [gray/h]}$$

Az ionizáló sugárzások biológiai hatásai

A biológiai hatások osztályozása:

Szomatikus: a hatást elszenvedő biológiai egyeden jelentkezik;

Genetikus: a besugárzott egyed utódain jelentkezik.

Determinisztikus: A károsodás súlyossága függ a dózistól, a hatás egy bizonyos küszöbdózis fölött következik be;

Sztochasztikus: A károsodás valószínűsége függ a dózistól, küszöbdózis nincs.

Az ionizáló sugárzás determinisztikus és sztochasztikus hatása

Sejti életciklus:

mitózis – interfázis – mitózis vagy apoptózis

Sejti rendszerek (szöveti- és őssejtek) sérülése:

- Azonnali pusztulás: nekrózis
- Életképtelenség: apoptózis
- DNS-lánchibák: fennmaradás → osztódás → mutáció

DNS lánchibák javítása „repair” enzimekkel az osztódás előtt

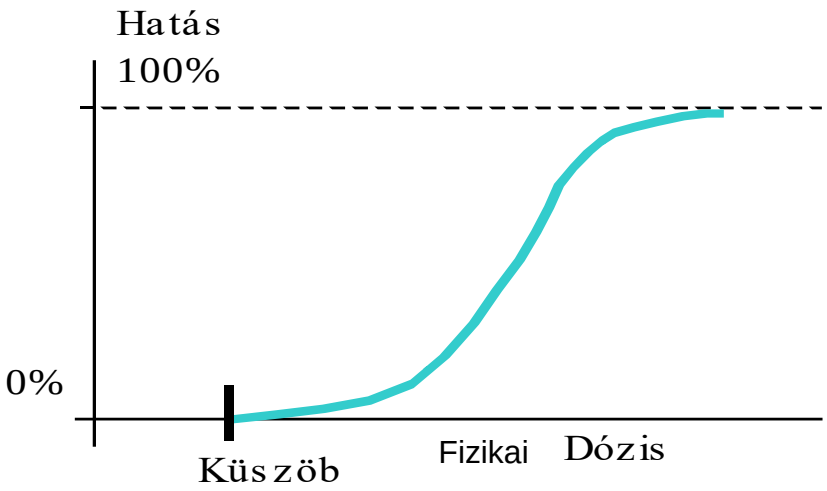
„Idegen” sejtek eltávolítása - immunrendszer

Az ionizáló sugárzás determinisztikus hatása

Determinisztikus hatás:

- küszöbdózishoz kötött (0,1 – 1 Gy, szövetenként változik);
- szövetpusztulást (nekrózist) okoz a sugárzás;
- akut/azonnali hatás;
- a hatás súlyossága függ a dózistól.

Morbiditás: megbetegedés
Mortalitás: halálozás



Az ionizáló sugárzás determinisztikus egészségkárosító hatása

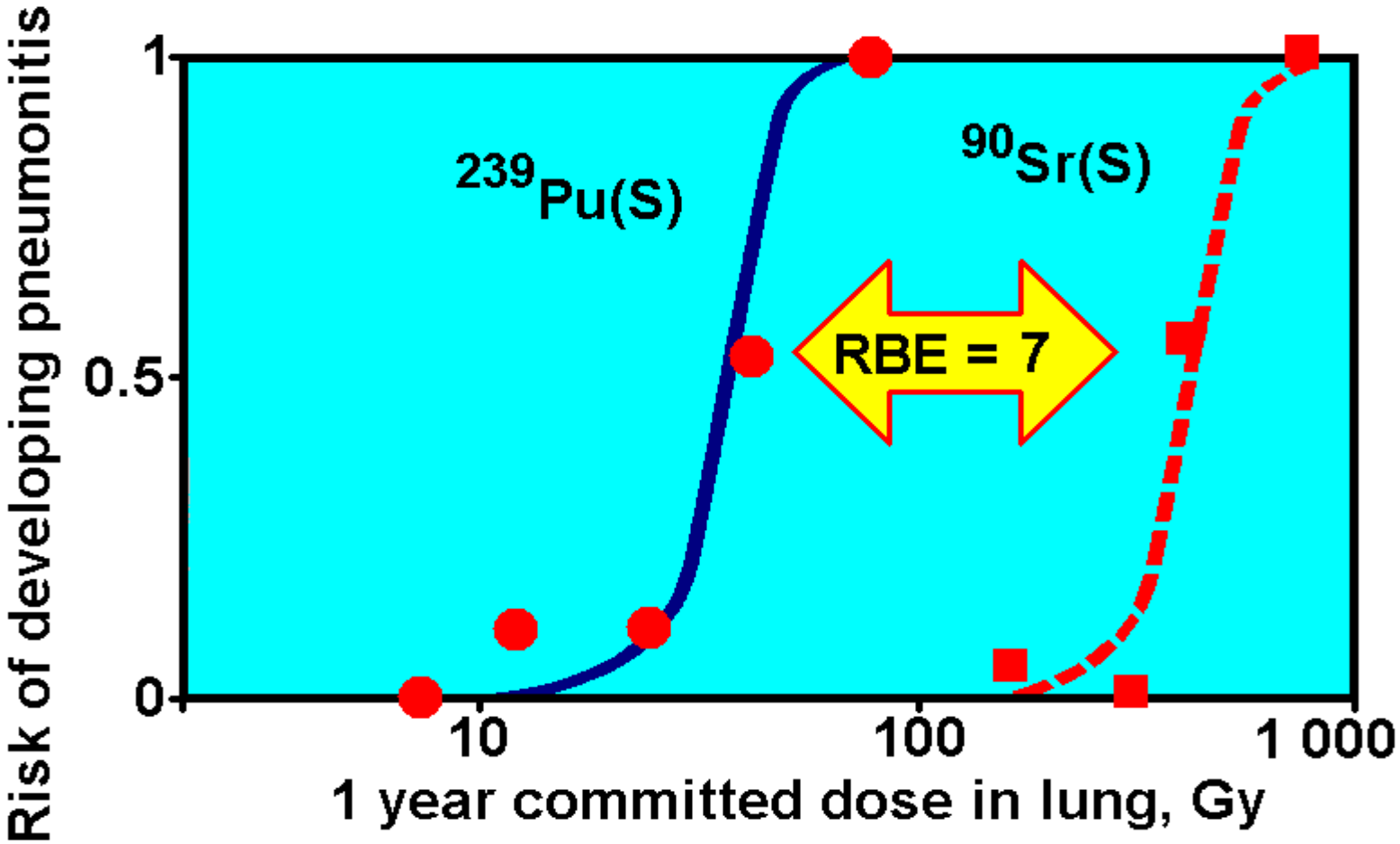
$$AD_T = \sum_R D_{R,T} \times RBE_{R,T}$$

A károsítás mértékét jellemző dózismennyiség: relatív biológiai egyenértékkel szorzott elnyelt dózis („RBE-weighted absorbed dose”)

J/kg = gray = Gy

Determinisztikus hatás - Relatív biológiai egyenérték

pneumonia



Az ionizáló sugárzás sztochasztikus hatása

A „fő célpont” a sejtmag DNS-állománya

DNS: cukor- és foszfátcsoportokból felépülő kettős spirál, amelyekhez szerves bázisok kapcsolódnak. Láncelem: nukleotid. A láncot a bázisok között hidrogénhidak tartják össze.

DNS-ből felépülő örökítő elemek: kromoszómák.

A DNS a sejtet felépítő fehérjék összetételét kódolja.

Gén: a DNS egy fehérjét kódoló, vagy egy sejti tulajdonságot meghatározó darabja.

A gének együtt alkotják az egyed genetikai információit tartalmazó genomot.

Egyenértékdózis – az ionizáló sugárzás biológiai hatása

$$H = D \cdot w_R \, [\text{sievert}, \text{Sv}]$$

w_R sugárzási tényező - a LET függvénye
$w_{R,\alpha} = 20$
$w_{R,\gamma} = 1$
$w_{R,\beta} = 1$
$w_{R,n} = 2{,}5 \div 20$ a neutronenergia függvényében

A sejti méretű élő térfogatba bevitt energia (mikrodózis) dönti el az elnyelt dózis biológiai veszélyességét (kártételét).

„Antropomorf” dózisfogalom és mértékegység: az emberi szövetek, sejtek ugyanattól a dózistól másképpen károsodnak, mint más élőlények sejtjei.

A sejti, szöveti reakció nem egységes – az egyenértékdózis csak a sztochasztikus hatásra vonatkozik.

A dózist okozó sugárforrás és a dózist elszenvedő személy kölcsönös pozíciója szerint <u>külső</u> és <u>belső sugárterhelés</u> jöhet létre.

$$E = H_E = \sum_T H_T w_T [Sv]$$

Effektív dózis
w_T szöveti súlyozó tényező

$$\sum_T w_T = 1$$

Szöveti súlyozó tényezők (ICRP-103 (2007), 2013/59/EURATOM direktíva, Magyarországon a 487/2015. kormányrendelet vezette be őket):

ivarszervek w_T=0,08 (*genetikus hatás*)

szomatikus hatások

legérzékenyebbek

w_T=0,12 tüdő, gyomor, belek, vörös csontvelő, emlő, <u>maradék</u>

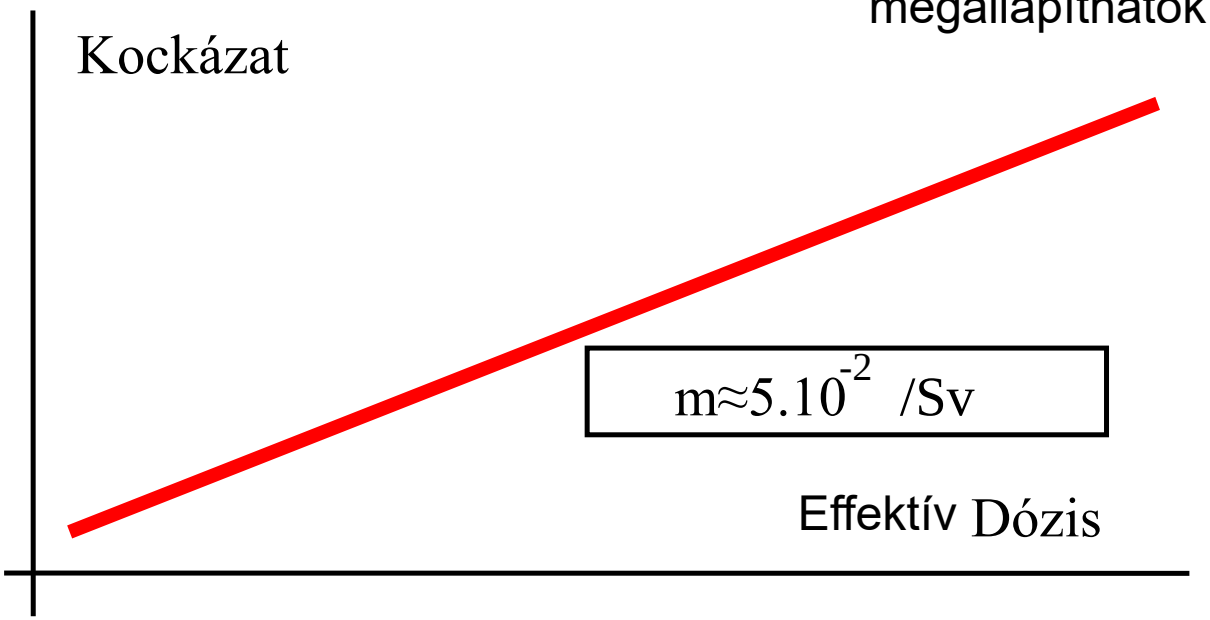
érzékenyek w_T=0,04 máj, pajzsmirigy, hólyag, nyelőcső

kissé érzékeny w_T=0,01 bőr, csontfelszín, nyálmirigyek, agy

Az ionizáló sugárzás egészségkárosító hatásai - Sztochasztikus hatás:

- nincs küszöbdózis (kis dózisok hatása nem igazolt)
- sejtmutációt okoz a sugárzás (javító mechanizmus)
- a hatás valószínűsége függ a dózistól
- kockázat/dózis függvény lineáris (?)

Az egyénre vonatkozó kockázati függvény a szövetek kockázati függvényének összege – mert az egyedi kockázatok nem voltak megállapíthatók.



w_T – a tényezők változása 1976 – 2007 között

Szövet	**ICRP-26**	**ICRP-60**	**ICRP-103**
Ivarszervek (*gen. hatás*)	0,25	0,20	0,08
Vörös csontvelő	0,12	0,12	**0,12**
Tüdő	0,12	0,12	**0,12**
Emlők	0,15	0,05	**0,12**
Pajzsmirigy	0,03	0,05	0,04
Csontfelszín	0,03	0,01	0,01
Többi szövet	0,30	0,05	**0,12**
Bél	-	0,12	**0,12**
Gyomor	-	0,12	**0,12**
Hólyag	-	0,05	0,04
Máj	-	0,05	0,04
Nyelőcső	-	0,05	0,04
Bőr	-	0,01	0,01
Nyálmirigyek	-	-	0,01
Agy	-	-	0,01

További dózisfogalmak

Lekötött dózis (H_C): inkorporált (belégzéssel vagy lenyeléssel) és a szervezetben 1 évnél tovább jelenlévő radioaktív anyag effektív dózisa (csak belső sugárterhelésre)

$$E_C = \int_0^T \frac{dE}{dt} dt \qquad \text{[Sv]}$$

Dóziskonverziós tényező = a belső sugárterhelés dózistényezője (DCF, más közleményekben *e(g)* jelöléssel): egységnyi, pillanatszerűen inkorporált radioaktivitás által okozott lekötött effektív dózis – tartalmazza a tartózkodási függvényt és a szöveti súlytényezőket.

$$e(g)_i = DCF_i = \frac{E_{C,i}}{A_{BE,i}} \qquad \text{[Sv/Bq]}$$

Sugárvédelmi szabályozás

487 – 491/2015. kormányrendeletek a sugárvédelem feladatairól az IAEA General Safety Requirements Part 3 (2014) alapján, a 2013/59/EURATOM uniós direktívával összhangban; 2022 tavaszán ezek egy részét „megismételték” OAH (Országos Atomenergia Hivatal) rendeletként, miután az OAH minisztériumoktól független besorolást kapott.

Alapelvek (a „szigorodás” sorrendjében):

- Indokoltság (az ionizáló sugárzás alkalmazása több haszonnal, mint kárral kell, hogy járjon)
- Optimálás (a maximális előnyhöz minimális, de nem nulla károsodási kockázat tartozzék)
- Korlátozás (egyéni, összegzett és forrásorientált korlátok szükségesek)

Sugárvédelmi korlátok, szabályozás

„Elhanyagolható dózis” ≤ 10 μSv/év effektív dózis – közvetlenül nem deklarált szabályozó → MENTESSÉG és FELSZABADÍTÁS kapcsolódik hozzá

DL – dóziskorlát - immissziós (személyi szintű) korlátozás

effektív (lekötött) dózis; az ionizáló sugárzások alkalmazásából származó, külső és belső sugárterhelés összege

foglalkozási korlát 20 mSv/év (5 év átlagában)

lakossági korlát 1 mSv/év

tervezett és baleseti helyzetekre külön szabályozás (vonatkoztatási szintek)

DC - dózismegszorítás - emissziós (forrásszintű) korlátozás

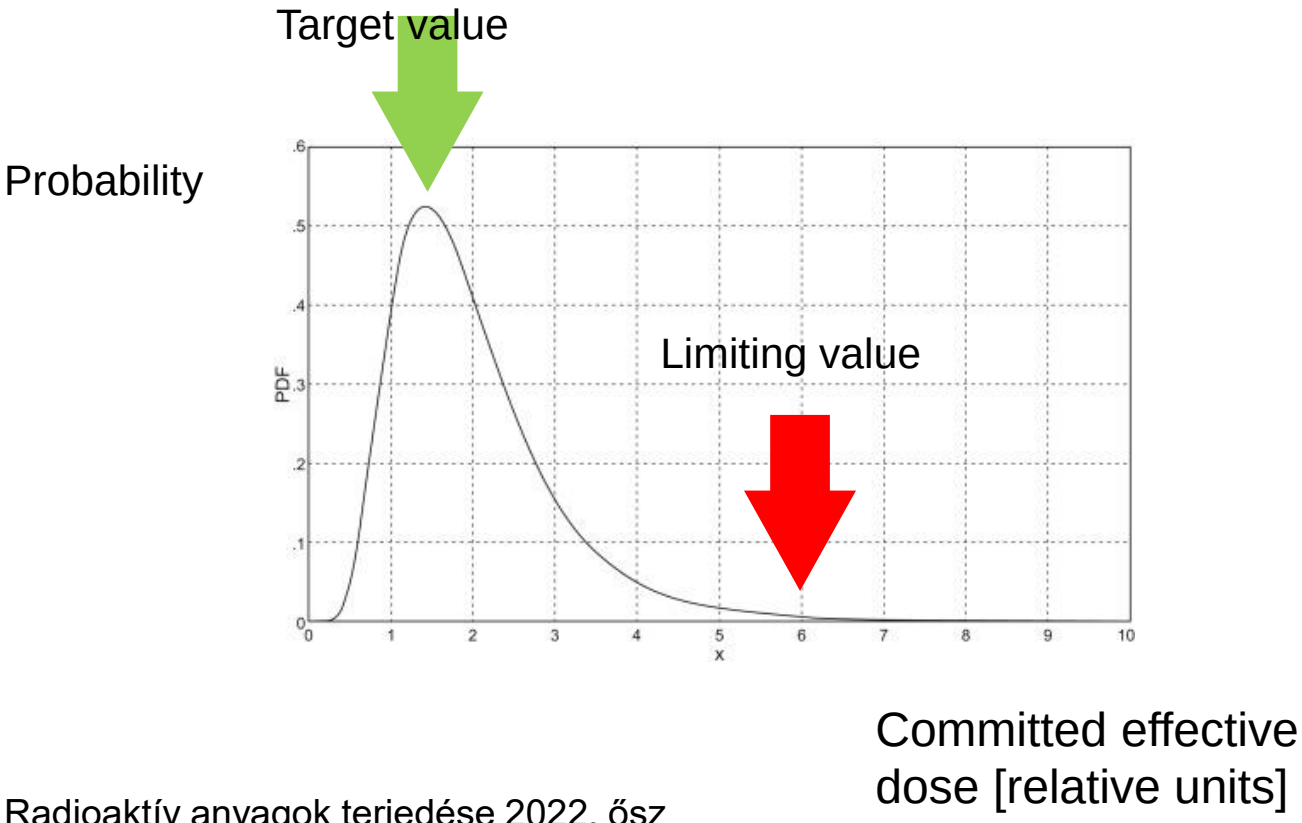
Foglalkozási helyzetre az adott létesítményben meghatározott értékek; Lakosságra: egy, a reprezentatív (lakossági vagy nem „sugaras” foglalkozási) csoporthoz tartozó fiktív személynek egy adott sugárforrástól származó maximális effektív dózisa (hatósági szabályzó) DC = 0.1 – 0.03 mSv/év

DC-ből levezetendők a kibocsátási szintek a megjelenő radionuklidokra

Egy adott személy által elszenvedett dózisok összegzendők, DE a DC-k NEM ADHATÓK ÖSSZE!

A dóziskorlátok értelmezése

Legislative dose limits (DL) are not optimized „target” values! Excession of DL must be „highly unprobable” ($<10^{-6}$) if radiation protection ordinance is kept.



Emissziós sugárvédelmi korlátok (belső sugárterhelés)

Az egy személybe bejutó aktivitás sokkal kisebb, mint a kibocsátható

$$\sum_i \left(A_{\max,\,i} \cdot e(g)_i\right) \leq DC$$

A_{max}: Az adott <u>dózismegszorítást</u> betartva a legérzékenyebb személybe (=reprezentatív személy) bevihető aktivitások összege

$A_{i,max} = f(A_{i,ki})$

A normális üzemelés során kibocsátott aktivitás (**<u>Kibocsátási korlát</u>** [Bq/év]) nem koncentrálódhat egyetlen személyben, és az távol van a forrástól. „i” az összes keletkező radioizotópot jelenti.

Az emissziós korlátozás két lényegi eleme, a létesítmény környezetében élő lakosságra vonatkozó dózismegszorítás és a létesítményből

* levegőbe és
* vízi úton

kibocsátott aktivitás közötti kapcsolatot a **TERJEDÉSI MODELLEK** teremtik meg. A terjedés során a szennyezés általában hígul, de vannak dúsulást okozó részfolyamatok is. A modell és egy valóságos terjedési folyamat összevetése a <u>validálás</u>.

Külső foton-dózisteljesítmény

$$\frac{dD}{dt} = \Phi_E \cdot \frac{\mu}{\rho}$$

$$\Phi_E = \frac{A \cdot f_R \cdot E_R}{4 \cdot r^2 \cdot \pi}$$

Φ_E: energiaáram-sűrűség (fluxus = fluencia idő szerinti deriváltja) [J/(m^{2}s)]
A = dN/dt: a sugárforrás aktivitása [bomlás/s = Bq]
f_R: részecske-(foton)gyakoriság [foton/bomlás]
E_R: fotonenergia [J/foton]

$$\frac{dD}{dt} = k_\gamma \cdot \frac{A}{r^2}$$

Érvényesség: pontszerű γ-sugárforrásra, gyengítetlen (primer) fotonsugárzásra.
Izodózis-felület = gömb

Négyzetes gyengülési törvény – a dózisszámítás alapja
k_γ: a külső sugárterhelés dózistényezője, szokásos dimenziója: [(μGy/h)/(GBq/m^2)]

Egynél több fotont kibocsátó γ-sugárforrás dózistényezője

j = összegzés az egyes energiákra

k = közeg

$$P_\gamma = A \cdot \sum_j f_j \cdot E_j$$

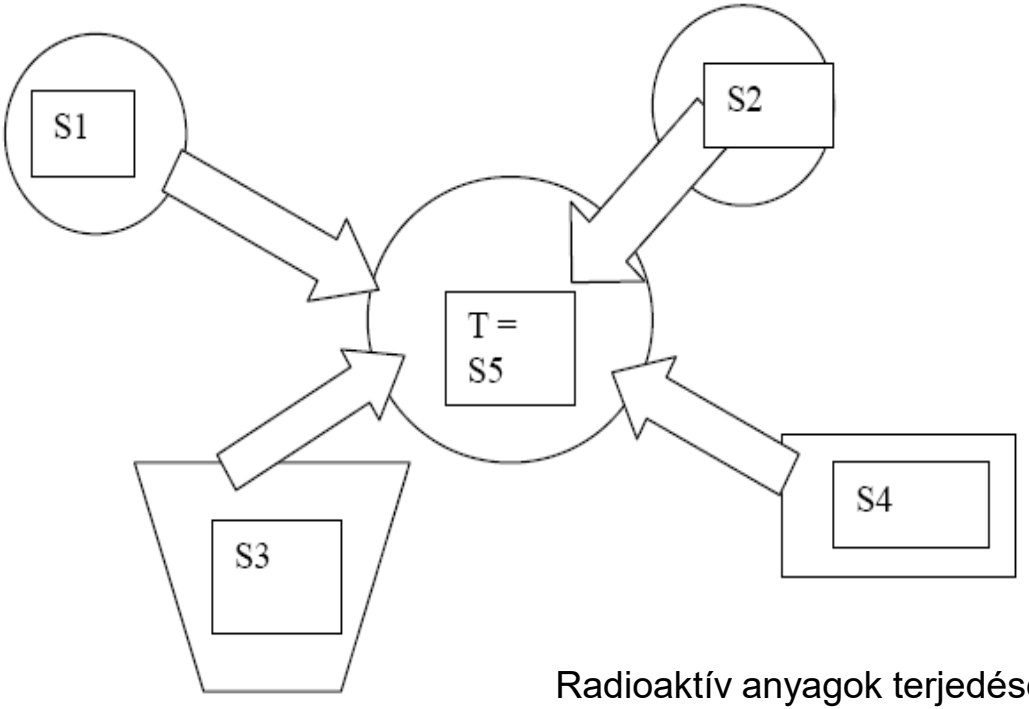
$$k_\gamma = \frac{\sum_j f_j \cdot E_j \cdot \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{k,j}}{4 \cdot \pi}$$

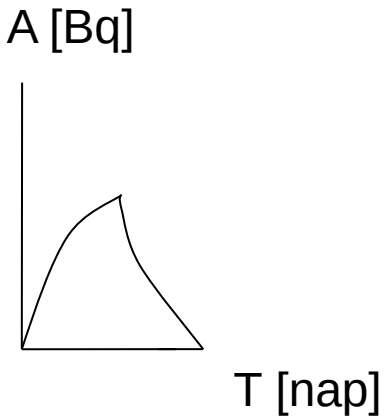
P_γ = forráserősség (source power) [keV/s] = energiaáram a tér minden irányába

Dózisteljesítmény számítása nem pontszerű (kiterjedt) sugárforrásra:
- a felület explicit függvényével;
- pontszerű elemekre bontással;
- az önabszorpció figyelembe vételével;

Belső sugárterhelés dózisa

A dózist egy-egy kiválasztott radionuklidra az egyes szövetek eltérő egyenértékdózisainak összegzéséből kapjuk, a dózist a radioaktív anyagot tartalmazó szövetekből kiinduló sugárzás (radiation R) okozza: célpont- (target T) és forrás- (source S) szöveteket különböztetünk meg. (S=T is lehetséges)





Retenció: a radioaktivitást hordozó anyag tartózkodása egy szövetben

Belső sugárterhelés dózisa

A dózist az egyes szövetek eltérő egyenérték-dózisainak összegzéséből kapjuk, a dózist a radioaktív anyagot tartalmazó szövetekből kiinduló sugárzás (radiation R) okozza: célpont- (target T) és forrás- (source S) szöveteket különböztetünk meg. (S=T is lehetséges)

$$H_T = \left[\sum_S u_S \cdot \sum_R w_R \cdot E_R \cdot f_R \cdot Q_R(S \to T)\right] \cdot \frac{1}{m_T}$$

A H_T szöveti egyenértékdózist egy adott radioizotópra határozzuk meg.
u_S: az egyes forrás-szövetekben bekövetkező <u>bomlások</u> száma [darab]
w_R: sugárzási tényező [Sv/Gy] E_R: sugárzási energia [keV/részecske]
f_R: részecske-gyakoriság [részecske/bomlás] m_T: a célpont-szövet tömege [kg]
Q az R sugárzásfajtának az S szövetből kiinduló és a T szövetben energiát leadó hányada (<u>elnyelési hányad</u>) – 0 és 1 közötti szám.

Belső sugárterhelés dózisa

A radioaktív anyagot tartalmazó „forrás”-szövetekben végbemenő bomlások száma az inkorporáció óta eltelt *t* idő alatt:

$$u_s = \int_0^t A_s(t)dt$$

$$Q_{R,S\to T} = p(\vartheta) \cdot p(abs.)$$

Az elnyelési hányad a térszögtől és a sugárzásnak a szövetek anyagában történő abszorpciójától függ:

$$p(\vartheta) \approx \frac{\vartheta}{4\pi}$$

$$p(abs.)_{\alpha/\beta} = f(x_S, x_T, R_{\alpha/\beta})$$

x: vastagság
R: hatótávolság

$$p(abs.)_{\gamma/X} \approx 1 - \exp(-\mu_T x_T)$$

Terjedés biológiai közegekben

SA-modell: időfüggő transzportegyenletek

kompartmentek (rekeszek) között, melyeken belül pillanatszerű a koncentráció kiegyenlítődése

CF-modell: két rekesz között időben állandó a koncentrációk aránya a modellezés időtartományában

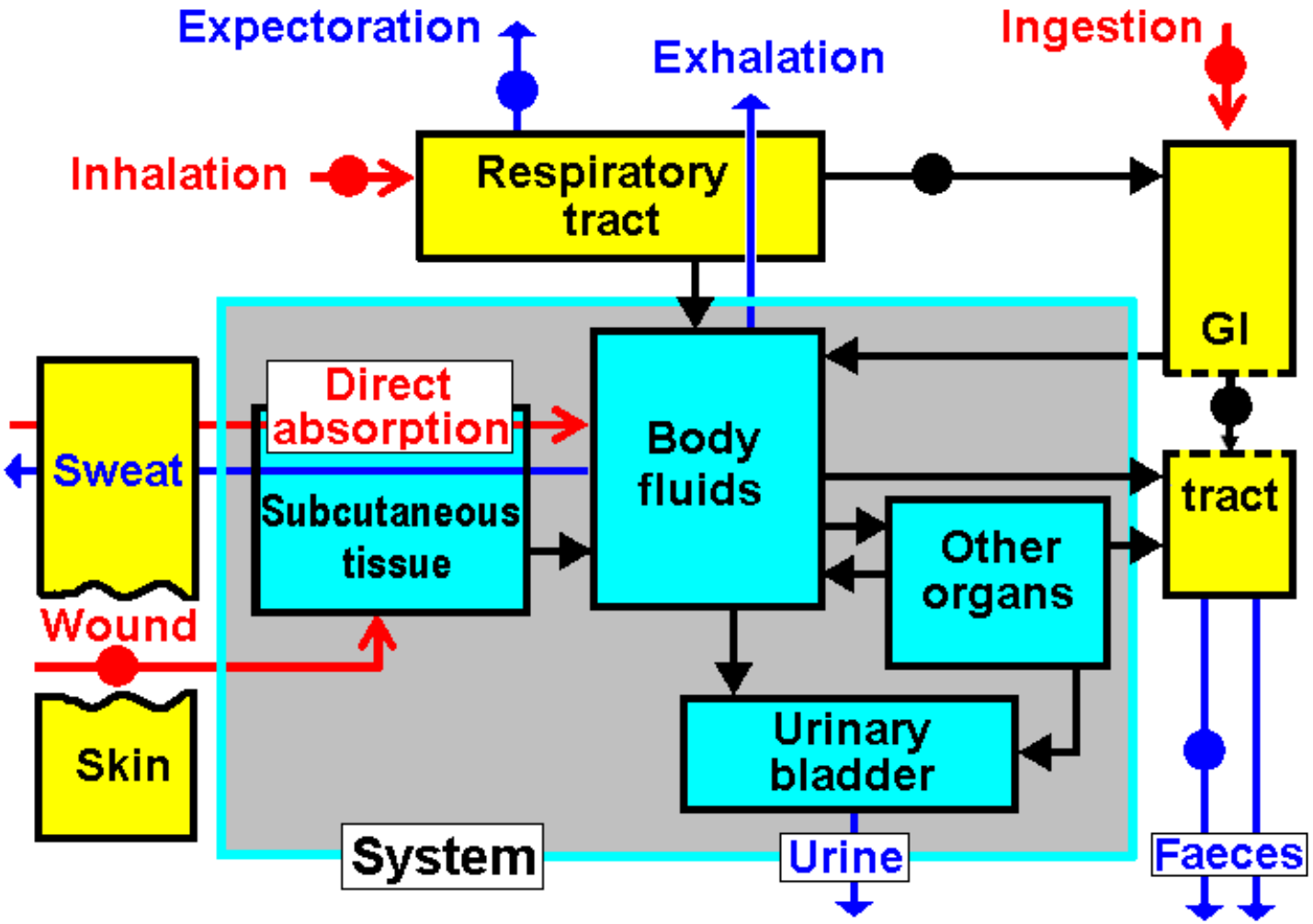
Alapvető módszerek:
SA (system analysis) és
CF (concentration factors)

$$\frac{dN_i}{dt} = \frac{c_{W,i}}{\lambda} \cdot W - (\alpha + \lambda) \cdot N_i$$

c [Bq/kg] vagy [Bq/m^3] a radionuklid koncentrációja az inkorporált anyagban
N radionuklidok száma
i radioizotóp fajtája
λ bomlási állandó [1/s]
α kiürülési hányad [1/s]
W a radioaktivitást hordozó anyag bevitele [kg/s] vagy [m^3/s]

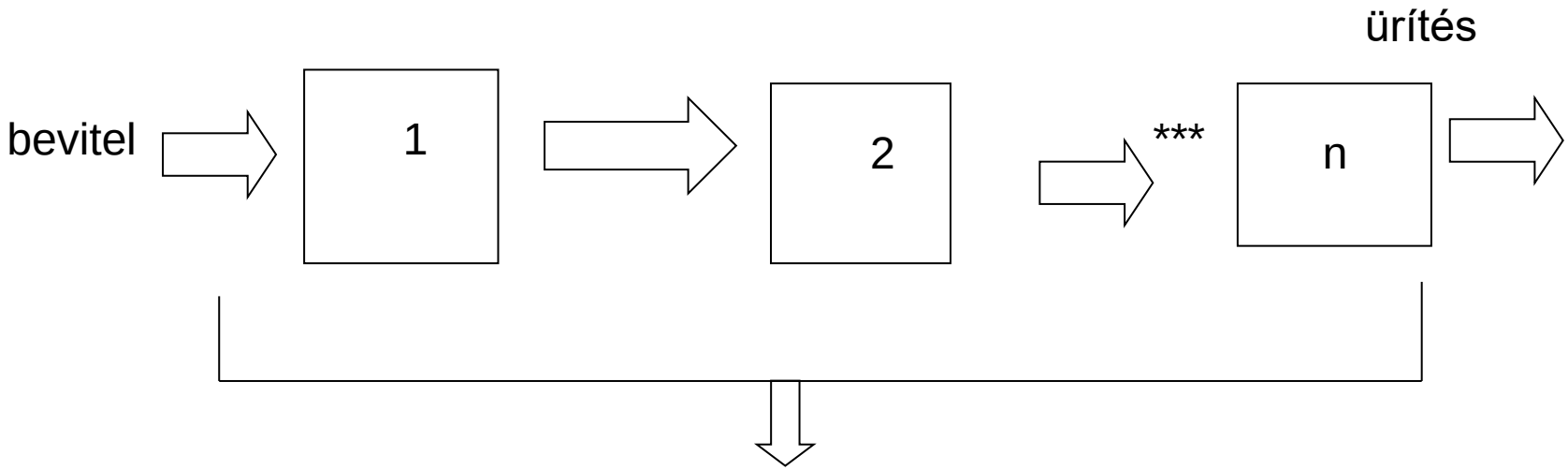
Egyszerű inkorporációs + kiürülési modell egy szövetre vagy az egész szervezetre: a megkötődést 100%-osnak tekintjük; a kiürülés valószínűsége időegység alatt állandó.

Generic biokinetic model



Terjedés emberi szövetekben – több kompartment

Beviteli útvonalak: belégzés, lenyelés, bejutás bőrön át



f_1 : átvitel a belső szervekbe testnedveken keresztül

f_1/belégzés: a tüdőből a testnedvek (vér, nyirok) által felvett hányad
f_1/lenyelés: az emésztőrendszerből a testnedvekbe jutó hányad
Belégzésnél 3 „sebességi modell” a felszívódásra a tüdőből: F (fast-gyors), M (medium-közepes), S (slow-lassú) – ezeknél az f_1 felvételi hányadok is eltérők lehetnek.

Terjedés emberi szövetekben

Összetett emberi modell: útvonalak, elágazások, tartózkodási idők

„Szekvenciális” szövetek: az (1) rekesz [kompartment] kimenete azonos a (2) bemenetével – anya- és leányelem-szerű

„Elágazás”: (1) ből (2a)-ba és (2b)-be is mehet a radionuklid

$$\frac{dN_i(1)}{dt} = \frac{c_{W,i}}{\lambda} \cdot W - (\alpha_1 + \lambda) \cdot N$$

$$\frac{dN_i(2a)}{dt} = (1 - f_1) \cdot \alpha_1 \cdot N - (\alpha_{2a} + \lambda) \cdot N$$

$$\frac{dN_i(2b)}{dt} = f_1 \cdot \alpha_1 \cdot N - (\alpha_{2b} + \lambda) \cdot N$$

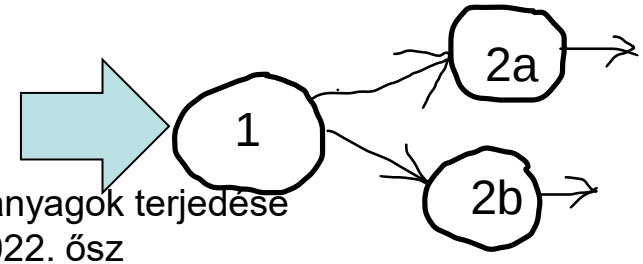
Belégzés: 1) orr/garat (NP) 2) légcső/hörgők (TB) 3) tüdőhólyagok (P)

Lenyelés: 1) gyomor (S) 2) vékonybél (SI) 3) felső vastagbél (ULI) 4) alsó vastagbél (LLI)

Egyszerűsítés: csak elsőrendű differenciálegyenletek = valószínűségi modell

α: kiürülési „valószínűség” időegység alatt

f_1: átviteli hányad a „2b” rekeszbe



Terjedés emberi szövetekben

Legegyszerűbb emberi modell – az általános differenciálegyenlet megoldása 1 rekeszre

$$A_i = \frac{c_{W,i}}{\lambda_i + \alpha_{bio}} \cdot W \cdot (1 - \exp[-(\lambda_i + \alpha_{bio}) \cdot t])$$

$$A_i = A_{BE,i} \cdot \exp[-(\lambda_i + \alpha_{bio}) \cdot t]$$

Felső egyenlet: a felvétel alatt érvényes, az így kialakuló végső aktivitás = A_{BE} az alsó egyenletben. (A felvétel akár pillanatszerű is lehet!)

Alsó egyenlet: a felvétel véget ért, a kiürülés folytatódik.

i: radioizotóp fajtája; adott szövetre a bevitt anyag <u>kémiai</u> formája határozza meg a biológiai (bio) kiürülést.

IAEA GSR Part 3: Beépülési hányadok, különböző felvételi típusokra

TABLE III.2A. WORKERS: COMMITTED EFFECTIVE DOSE PER UNIT INTAKE $e(g)$ VIA INHALATION AND INGESTION (Sv/Bq) (cont.)

Radionuclide[a]	Physical half-life	Inhalation				Ingestion	
		Type	f_1	$e(g)_{1\,\mu m}$	$e(g)_{5\,\mu m}$	f_1	$e(g)$
Fe-60	1.00×10^5 a	F	0.100	2.8×10^{-7}	3.3×10^{-7}	0.100	1.1×10^{-7}
		M	0.100	1.3×10^{-7}	1.2×10^{-7}		
Cobalt							
Co-55	17.5 h	M	0.100	5.1×10^{-10}	7.8×10^{-10}	0.100	1.0×10^{-9}
		S	0.050	5.5×10^{-10}	8.3×10^{-10}	0.050	1.1×10^{-9}
Co-56	78.7 d	M	0.100	4.6×10^{-9}	4.0×10^{-9}	0.100	2.5×10^{-9}
		S	0.050	6.3×10^{-9}	4.9×10^{-9}	0.050	2.3×10^{-9}
Co-57	271 d	M	0.100	5.2×10^{-10}	3.9×10^{-10}	0.100	2.1×10^{-10}
		S	0.050	9.4×10^{-10}	6.0×10^{-10}	0.050	1.9×10^{-10}
Co-58	70.8 d	M	0.100	1.5×10^{-9}	1.4×10^{-9}	0.100	7.4×10^{-10}
		S	0.050	2.0×10^{-9}	1.7×10^{-9}	0.050	7.0×10^{-10}
Co-58m	9.15 h	M	0.100	1.3×10^{-11}	1.5×10^{-11}	0.100	2.4×10^{-11}
		S	0.050	1.6×10^{-11}	1.7×10^{-11}	0.050	2.4×10^{-11}
Co-60	5.27 a	M	0.100	9.6×10^{-9}	7.1×10^{-9}	0.100	3.4×10^{-9}
		S	0.050	2.9×10^{-8}	1.7×10^{-8}	0.050	2.5×10^{-9}
Co-60m	0.174 h	M	0.100	1.1×10^{-12}	1.2×10^{-12}	0.100	1.7×10^{-12}
		S	0.050	1.3×10^{-12}	1.2×10^{-12}	0.050	1.7×10^{-12}
Co-61	1.65 h	M	0.100	4.8×10^{-11}	7.1×10^{-11}	0.100	7.4×10^{-11}
		S	0.050	5.1×10^{-11}	7.5×10^{-11}	0.050	7.4×10^{-11}
Co-62m	0.232 h	M	0.100	2.1×10^{-11}	3.6×10^{-11}	0.100	4.7×10^{-11}
		S	0.050	2.2×10^{-11}	3.7×10^{-11}	0.050	4.7×10^{-11}

Terjedés biológiai közegekben

Példa: ^{3}H a szervezetben

„Effektív” felezési idő”:

$$T_{eff} = \frac{\ln 2}{\lambda_i + \alpha_{bio}}$$

λ_{ph}: fizikai bomlási állandó ($T_{1/2}$=12,3 év)
α_{bio}: biológiai kiürülési tényező

2006 – 2009: „Helycsinálás-projekt” - Négy, 25-30 éve megtelt püspökszilágyi „A” típusú medence megnyitása, a hulladék osztályozása, feldolgozása és a továbbra is radioaktív hulladéknak kezelendő anyagok visszahelyezése. A végrehajtás egyik előre ismert sugárvédelmi kockázatát a csomagokból a medencék légterébe jutott ^{3}H jelentette.

Példa: munkavégzés során felvett radioaktivitás dózisa (trícium levegőben)

- A leltár szerint 10^{13} Bq nagyságrendű tríciumot temettek el a püspökszilágyi RHFT-telep A11-es medencéjébe 1976 – 1979 között.
- A medence levegőjében a vízpárához kötött trícium aktivitáskoncentrációja 400–900 MBq/m^3 volt (mintavétel 2006-ban).
- A munkát végző szakemberek 40-50 munkanapot töltöttek ott (jelentős krónikus inkorporáció történhetett volna elégtelen légzésvédelem esetén).

A vizsgálatok menete

- Vizeletminták gyűjtése a helyszínen dolgozóktól
- A vizeletminták trícium-aktivitáskoncentrációjának meghatározása: azeotróp desztilláció után folyadékszcintillációs (LSC) mérés
- Dózisbecslés krónikus-akut konverzióval és „egykompartmentes” anyagcseremodell segítségével

Egykompartmentes modell (1)

Kiindulási (részben konzervatív) feltételezések

- A trícium HTO kémiai formában, fizikailag gőzként vagy vízként van jelen
- Minden munkanapon ugyanannyi trícium inkorporálódik, a kiürüléshez képest pillanatszerűen
- A trícium egységes biológiai (≈effektív) felezési ideje 9,7 nap

  (D. M. Hamby, *Health Physics*, **77** (1999) 291-297.)
- A vizelettel átlagosan napi 1500 ml víz ürül ki, ez a teljes vízleadás kb. 40%-a (munkavégzés közben izzadtsággal egy kicsit kevesebb, kilégzéssel és széklettel a többi)
- A természetes eredetű tríciumot elhanyagoljuk.

Egykompartmentes modell (2)

$$A_{ü} = A_0 \cdot \left(e^{-\alpha t} - e^{-\alpha(t+1)}\right)$$

- $A_ü$: a vizsgálat napján <u>egy adott korábbi felvételből</u> kiürülő aktivitás = az aznapi és a következő napi, még a szervezetben lévő aktivitás különbsége
- A_0: a vizsgálat előtt t nappal felvett aktivitás
- Kihasználjuk, hogy a fizikai bomlási állandó (λ) nagyságrendekkel kisebb a kiürülési tényezőnél (α)

$$\alpha = \frac{\ln 2}{T_B}$$

Egykompartmentes modell (3)

$$A_{\ddot{o}} = \sum_{i=0}^{n} A_{\ddot{u}} = A_0 \cdot \sum_{i=0}^{n} \left(e^{-\alpha i} - e^{-\alpha(i+1)}\right) = A_0 \cdot s_n$$

- $A_{\ddot{o}}$: a vizsgálat napján kiürülő összes aktivitás
- A_0: a naponta felvett (<u>azonos mennyiségűnek feltételezett</u>) aktivitás
- *n*: a tríciumfelvétel napjainak száma

$$0{,}40 \cdot A_{\ddot{o}} = c \cdot Q$$

- *c*: a trícium aktivitáskoncentrációja a vizeletben [ezt megtudtuk a kalibrált mérőrendszerrel végzett mérésből]
- *Q*: a vizelet napi mennyisége

Egy konkrét számítás

munkanap	eltelt idő[nap]	lebomlás	lebomlás +1 nap	összes mért hányad		
2007. okt. 24.	54	0,0237	0,0221	0,0016		
2007. okt. 25.	53	0,0254	0,0237	0,0017		
2007. okt. 26.	52	0,0272	0,0254	0,0018		
2007. okt. 29.	49	0,0335	0,0313	0,0022		
2007. okt. 30.	48	0,0359	0,0335	0,0024		
2007. okt. 31.	47	0,0385	0,0359	0,0026		
2007. nov. 5.	42	0,0544	0,0508	0,0036		
2007. nov. 6.	41	0,0583	0,0544	0,0039		
2007. nov. 7.	40	0,0625	0,0583	0,0042		
2007. nov. 8.	39	0,0670	0,0625	0,0045		
2007. nov. 9.	38	0,0718	0,0670	0,0048		
2007. nov. 13.	34	0,0948	0,0884	0,0063		
2007. nov. 14.	33	0,1016	0,0948	0,0068		
2007. nov. 15.	32	0,1089	0,1016	0,0073		
2007. nov. 16.	31	0,1167	0,1089	0,0078		
2007. nov. 19.	28	0,1436	0,1340	0,0096		
2007. nov. 20.	27	0,1540	0,1436	0,0103		
2007. nov. 21.	26	0,1650	0,1540	0,0110		
2007. nov. 22.	25	0,1768	0,1650	0,0118		
2007. nov. 23.	24	0,1895	0,1768	0,0127		
2007. nov. 28.	19	0,2680	0,2501	0,0179		
2007. nov. 29.	18	0,2873	0,2680	0,0192		
2007. nov. 30.	17	0,3079	0,2873	0,0206		
2007. dec. 3.	14	0,3790	0,3536	0,0254		
2007. dec. 4.	13	0,4062	0,3790	0,0272		
2007. dec. 5.	12	0,4354	0,4062	0,0291		
2007. dec. 6.	11	0,4666	0,4354	0,0312		
2007. dec. 10.	7	0,6156	0,5744	0,0412		
2007. dec. 11.	6	0,6598	0,6156	0,0442		
2007. dec. 12.	5	0,7072	0,6598	0,0473		
2007. dec. 13.	4	0,7579	0,7072	0,0507		
2007. dec. 17.						
		7,0401	6,5688	0,4714	0,4714	
	c[Bq/L]	Q[L/nap]	napok száma	bevitt Bq/nap	DCF[Sv/Bq]	Összes dózis[Sv]
	89	1,5	31	283,2	2,20E-11	4,83E-07

Eredmények (2007)

Vizsgált személy	H_E [μSv] 1. mérés	H_E [μSv] 2. mérés	H_E [μSv] összesen
KK	5,2	1,3	6,5
LL	n.a.	0,83	0,83
MM	0,3	n.a	0,3
NN	0,6	0,66	1,3
OO	n.a	1,8	1,8
PP	n.a.	1,2	1,2
QQ	17	0,45	17
RR	7,1	1,4	8,5
TT	n. a.	0,23	0,23

Dózisbecslés a kiviteli tervben:

az A11 medence ürítésére 364 μSv,

az A12 medence ürítésére 22,6 μSv.

A modell érzékenységének vizsgálata

3 forgatókönyv a tríciumfelvétel időtartamára:

(a): 1 hétig a mérés előtt

(b): 13 héten át

(c): 1 hétig, 12 héttel a mérés előtt

Vizsgált személy	^{3}H konc. [Bq/dm^3]	Szórás [%]	H_E [μSv] (a) eset	H_E [μSv] (b) eset	H_E [μSv] (c) eset
KK	253	6,7	0,44	2,09	148
LL	164	9,9	0,23	1,1	78
MM	127	n. a.	0,22	1,05	74
NN	352	6,2	0,61	2,91	206
OO	241	n. a.	0,42	1,99	141
PP	89	n. a.	0,15	0,735	52
QQ	280	7,9	0,49	2,31	164
RR	45	22	0,063	0,299	21

A többi paraméterrel (Q, DCF, c) egyenesen arányos a becsült dózis.

Terjedés biológiai közegekben

Összetett élővilág-modellek: az emberi szervezetben alkalmazottakhoz hasonló terjedési függvények növényi részek, illetve állati szervek között.

SA és CF modellek is használatosak.

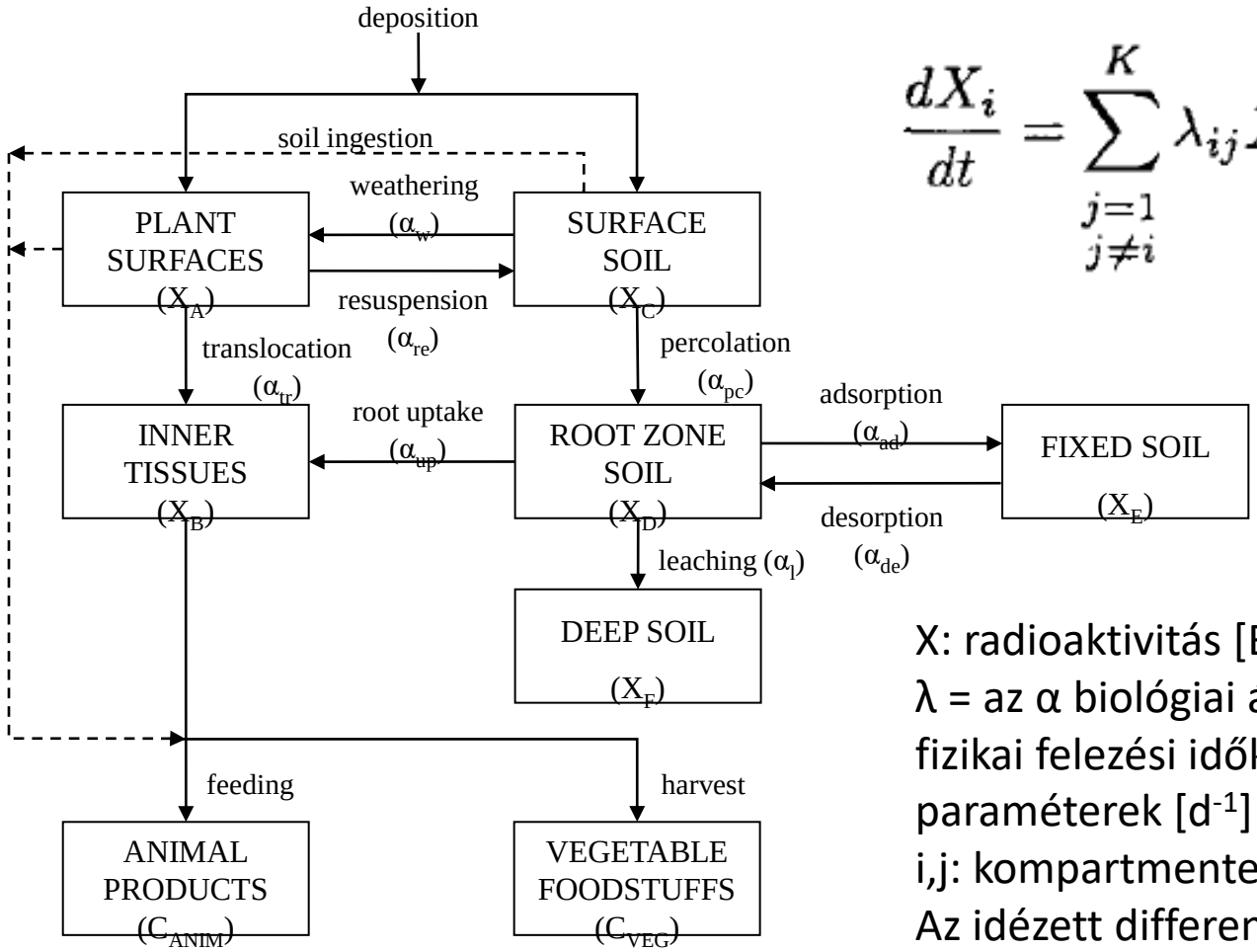
SA modell összetett természeti közegekben – DYNACON program: Hwang et al. Journal of Nuclear Science and Technology 35 (1998) 454-461

Baleseti kibocsátások terjedésének számítására készült, dózisbecslést végző programmal (FADAS) összekapcsoltan.
Elsőrendű diff. egyenletek a kiülepedett hányadra (forrástag) és a rekeszek közötti anyagátvitelre (növekvés és fogyás = átviteli tényezők).
Segítségével CF modellben használatos koncentrációarányokat is meghatároztak.

Összehasonlító elemzéshez használták az US NRC Regulatory Guide 1.109 hivatalos amerikai modellprogrammal.

Rekeszek:

Talaj: felszín, gyökerek zónája, kötött talaj, mély talaj;
Növények: felszín, belső szövetek;
Állati táplálék növényekből;
Emberi táplálék növényekből és állatokból.



$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^{K} \lambda_{ij} X_i - X_i \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^{K} \lambda_{ij},$$

X: radioaktivitás [Bq]

λ = az α biológiai átviteli tényezőket és a fizikai felezési időket egyesítő átviteli paraméterek [d^{-1}]

i,j: kompartmentek

Az idézett differenciálegyenlet egy adott radionuklidra vonatkozik.

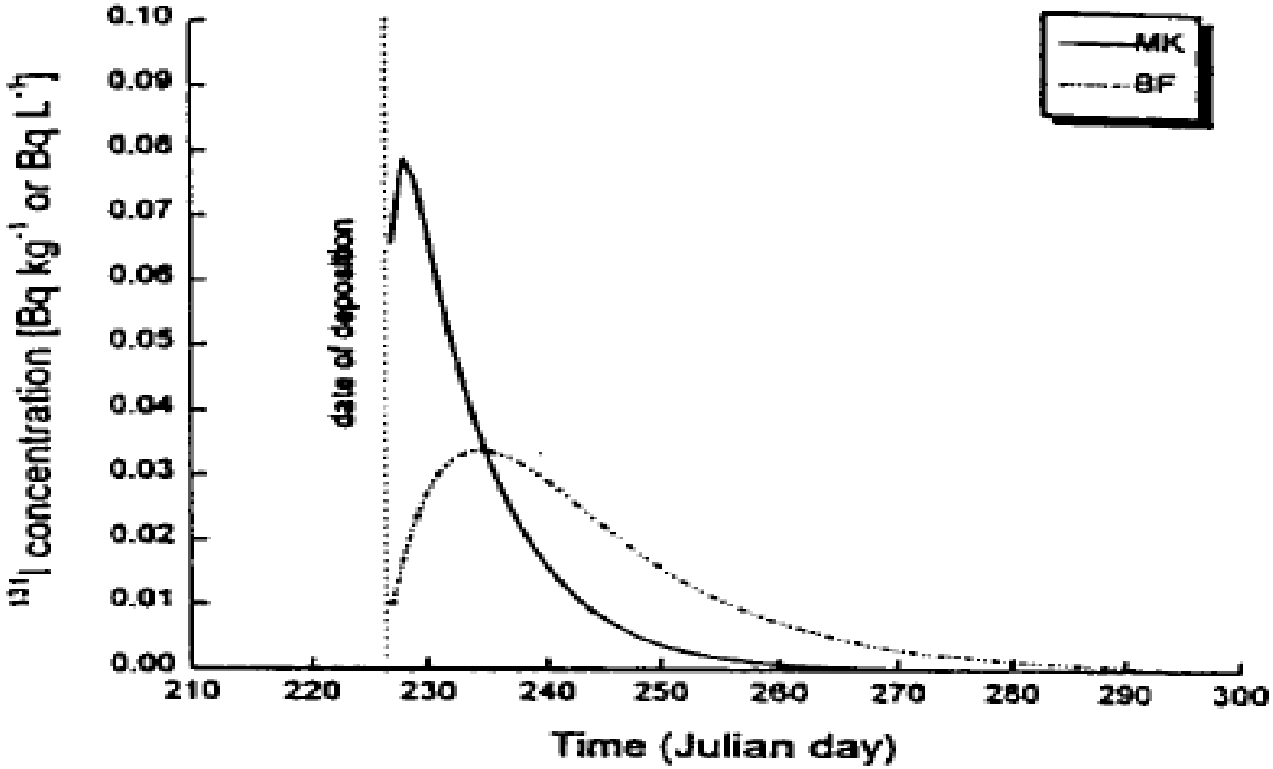
Eredmények: a DYNACON program a forrástagban szereplő radionuklidokra $(Bq/kg)_{élelmiszer}$ / $(Bq/m^2)_{felületi\ szennyezettség}$ időfüggő értékeket ad meg.

Az emberhez eljutó radioaktivitás számításában figyelembe vett táplálékok a DYNACON programban

Table 1 Foodstuffs considered in DYNACON

Foodstuff category	Typical foodstuff	Relevant foodstuffs
Rice	Rice	Rice
Cereals	Barley	Barley, wheat, corn, sorghum
Legumes	Soybean	Soybean, red bean, green bean
Leafy vegetables	Chinese cabbage	Chinese cabbage, lettuce, spinach
Root vegetables	Radish	Radish, garlic, onion, green onion, carrot
Fruit-type vegetables	Cucumber	Cucumber, pumpkin, watermelon, tomato
Potatoes	White potato	White potato, sweet potato
Fruits	Apple	Apple, pears, persimmon, orange, grape
Milk	Milk (cow)	Milk
Beef	Beef (bull)	Beef
Eggs	Egg	Egg
Poultry	Chicken	Chicken
Pork	Pork	Pork

DYNACON eredmények: ^{131}I tejben és marhahúsban



MK: Milk, BF: Beef

g. 4 Variation of ^{131}I concentrations in milk and beef as a function of time following an acute deposition (date of deposition: Aug. 15th)

Terjedés biológiai közegekben

CF-modell: ökológiai rendszerek között egyszerű, a termő időszakra érvényes koncentráció-arányosságok

$$c_{tissue} = \sum_j F_j \cdot Q_j \cdot c_j \approx \hat{F} \sum_j Q_j \cdot c_j$$

c_{tissue}: koncentráció az állati vagy emberi szövetben [Bq/kg]
j: takarmány fajtája
c_j: koncentráció a takarmányban [Bq/kg vagy Bq/m^2]
Q: fogyasztás az adott takarmányból [kg/nap]
F: átviteli (transzfer) tényező [nap/kg vagy nap/m^2] „egyensúlyban”

Terjedés biológiai rendszerekben - CF módszer – a DYNACON programmal számított, már nem időfüggő átviteli arányok

F transzfer együttható tej, hús és tojás esetén [Bq/kg]/[Bq/nap]					
radioizotóp (vízoldható vegyületként)	Élelmiszer fajtája				
	Tej (tehén)	Hús (tehén)	Hús (sertés)	Hús (tyúk)	Tojás (tyúk)
^{60}Co	0,00007 *	0,0001*	0,002	2	0,1
^{90}Sr	0,0028	0,008	0,02	0,08	0,2
^{131}I	0,01	0,04	0,003	0,01	3
^{137}Cs	0,0079	0,05	0,24	10	0,4

*: szervetlen vegyületek

A vegyületek szerepe a felvételben: az emberi szervezetbe juttatott diagnosztikai célú radioaktív anyagok (idézetek Köteles Gy.: Sugáregészségtan c. tankönyvéből)

Nuklid	Radio-farmakon	Vizsgálat	Applikáció módja	Aktivitás (MBq)	Effektív dózis (mSv)
^{99m}Tc	Pertechnetát	agy-szcintigráfia	iv.	500	6
^{99m}Tc	HSA	vérpool-szcintigráfia	iv.	800	7
^{99m}Tc	DTPA	vese-szcintigráfia	iv.	300	2
^{99m}Tc	DMSA (III)	vese-szcintigráfia	iv.	80	0,7
^{99m}Tc	Kolloid	nyirokcsomó-szcintigráfia	im.	40	0,4
^{99m}Tc	Kolloid	könny	szemcsepp	4 csepp (10 MBq)	0,4

Az emberi szervezetbe juttatott diagnosztikai célú radioaktív anyagok

^{99m}Tc	MIBI	szívizom-szcintigráfia	iv.	300	4,0
^{99m}Tc	HM-PAO	agyi véráramlás	iv.	500	5,0
^{99m}Tc	Techgáz	tüdőventiláció	inhaláció	400	0,07
^{111}In	Anti-miozin monoklonális ellenanyag	szív-szcintigráfia	iv.	80	19
^{111}In	Anti-CEA monoklonális ellenanyag	gasztrointeszti-nális tumor szcintigráfia	iv.	150	37
^{123}I	Jodide	pajzsmirigy-szcintigráfia	per os/iv.	20	4,0

Az emberi szervezetbe juttatott diagnosztikai célú radioaktív anyagok

^{123}I	o-Iodo-hippu-rate	vese-szcintigráfia renográfia	iv.	20	0,2
^{125}I	HSA	plazmatérfogat	iv.	0,2	0,06
^{201}Tl	Tk-klorid	szív-szcintigráfia	iv.	80	18
^{201}Tl	Tl-klorid	tumor-szcintigráfia	iv.	150	37

Az emberi szervezetbe juttatott diagnosztikai célú radioaktív anyagok

Nuklid	Radiofarmakon	Vizsgálat	Applikáció módja	Alkalmazott aktivitás (MBq)	Effektív dózis (mSv)
^{11}C	metionin	agytumor	iv.	400	2
^{13}N	ammónia	szív-véráramlás	iv.	550	2
^{15}O	víz	agyi véráramlás	iv.	2000	2
^{18}F	FDG	tumor-szcintigráfia	iv.	400	10
^{18}F	fluorid	csont-szcintigráfia	iv.	250	7

iv.: intravénás; im.: intramuszkuláris

A környezeti közegekben (levegő, víz) végbemenő terjedés általános egyenlete

A migráció (*terjedés*) során a szennyező radioaktív anyagok koncentrációja időben és térben változik

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = Ad + Df + Re + Pr + S(t) - \lambda_i \cdot c_i$$

Minden radioaktív komponensre külön alkalmazandó – kémiai forma szerint is!

Részfolyamatok:
Ad – advekció, Df – diffúzió, Re – reakció, Pr – ülepedés
S(t): időben változó forrástag , radioaktív bomlás

A környezeti terjedés hajtóereje - potenciálok

<u>Gravitációs és termodinamikai potenciál</u>

$$\phi_{gr.} = z = \frac{E_z}{m \cdot g} = \frac{m \cdot g \cdot h}{m \cdot g}$$

$$\phi_{td.} = \frac{p \cdot V}{m \cdot g} = \frac{p}{\rho \cdot g}$$

Gravitációs potenciál

Termodinamikai potenciál

$$\phi_{gr.+td.} = h = z + \frac{p}{\rho \cdot g}\,[m]$$

Közös „környezeti” potenciál – ennek változásai határozzák meg a természeti közegek kényszermozgását = **advekcióját**.

A környezeti terjedés hajtóereje - potenciálok

<u>Kémiai változások potenciálja:</u>

kémiai potenciál

$R=N_A.k_B=6{,}02\times10^{23}\text{mól}^{-1}.1{,}381\times10^{-23}\text{J/K}=8{,}314\text{J/(mól.K)}$

$$\mu_i = RT \cdot \ln(a_i)$$

μ_i az i-edik komponens kémiai potenciálja,
T: hőmérséklet
a_i: az i-edik komponens aktivitása
R: egyetemes gázállandó, az Avogadro-szám (N_A) és a Boltzmann-állandó szorzata (k_B: a gázok kinetikus energiájának változása a hőmérséklettel)

$$\lim(a_i) = c_i$$
$$c_i \to 0$$

híg elegyeknél az aktivitás egyenlő a molaritással [mól/dm^3].

A „szabad” rendszerekben (gáz, folyadék) az anyag véletlenszerűen szétterül a kisebb kémiai potenciál irányába. (≈ rendezetlenségre törekvés) A kémiai potenciál különbsége heterogén rendszereknél is lehet a **diffúzió** hajtóereje, ha a fázisok között lehetséges anyagátmenet.

A terjedési függvény részei

Advekció

- Hajtóereje a gravitációs és (ha változhat) a termodinamikai (= „vegyes környezeti”) potenciál összegének gradiense
- A mozgás iránya a gradiensvektor irányával nem feltétlenül azonos (domborzat; folyóágy)
- A közeg részecskéinek sebességével kb. azonos a szennyezés

részecskéinek advekciós sebessége is.

$$grad(h) = \nabla h = \left[\frac{\partial h}{\partial x}, \frac{\partial h}{\partial y}, \frac{\partial h}{\partial z}\right] \Rightarrow u_x, u_y, u_z$$

és

$$\frac{dc_A}{dt} = \vec{u} \cdot \nabla c_A$$

u: a közeg sebességvektora,

c_A: az „A” komponens koncentrációja

A terjedési függvény részei

Egy oldott (a mozgó közeg által szállított) komponens egyirányú advekciós egyenlete:

$$\frac{dc_A}{dt} = u_x \cdot \frac{\partial c_A}{\partial x}$$

Itt feltételeztük, hogy

- az advekciós gradiens kizárólag x irányú,

vagy

- csak x irányú mozgás (áramlás) lehetséges.

Az x irányban fennálló koncentráció-gradiens u_x sebességgel halad előre együtt az áramló közeggel (= szél, folyó).

A terjedési függvény részei

Diffúzió

- hajtóereje a *kémiai potenciál gradiense* (Fick-törvények: részecskék, molekulák, ionok „véletlen” irányú rendezetlen mozgása)
- a diffúzió következtében előálló lineáris sebesség térben és időben *csak változó* lehet
- a diffúzió „közvetlenül” csak az egyes (i) komponensekre értelmezhető, a mátrix koncentrációja nem (alig) változik.

$$u_{i,j} \sim \frac{\partial \mu_i}{\partial j}, j = x, y, z$$

u_i: az i-edik komponenshez rendelhető diffúziós sebesség [m/s]
μ_i: a komponens kémiai potenciálja

A terjedési függvény részei

Diffúzió

$$J_{i,x} = -D_{M,i} \cdot \frac{\partial c_i}{\partial x}$$

$J_{i,x}$ az i-edik radioaktív komponens <u>*áramsűrűsége*</u> „x” irányban (részecskeáram/felületi vetület)

$$\left[\frac{Bq}{m^2 s}\right]$$

Fick I. törvénye

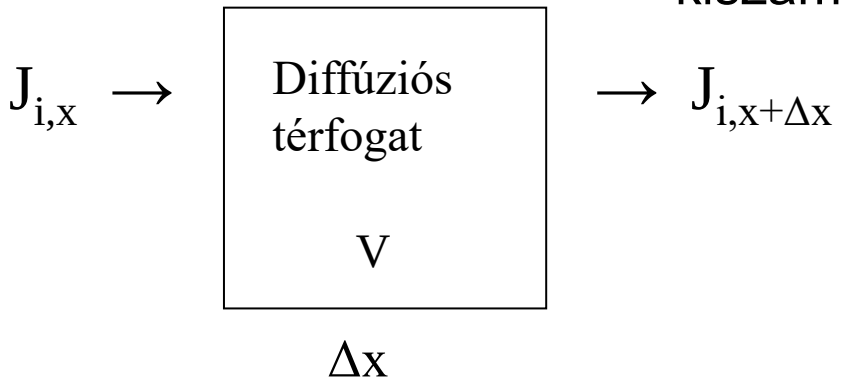
$D_{M,i}$ a mátrixra (M) és az i-edik (kémiai) komponensre egyaránt jellemző <u>*diffúziós együttható.*</u> $D_{M,i}$ állapotfüggő, értékét emellett a komponens és a mátrix molekulái közötti kölcsönhatás határozza meg. *Homogén, stacionárius* rendszerben D [m^2/s] helytől és időtől függetlenül állandó.

$J_{i,x}$: áramsűrűség = <u>fluxus</u>

A terjedési függvény részei

Diffúzió

A tömegmegmaradás törvénye értelmében a V térfogatú „dobozból” be- és kiáramló <u>anyagáramok</u> különbsége, azaz koncentrációváltozás a „dobozban” kiszámítható:



$$V \cdot \left(\frac{dc}{dt}\right) = (J_{i,x} - J_{i,x+\Delta x}) \cdot S$$

mivel $V \approx S \cdot \Delta x$

S: a fiktív „doboz”-nak az áramlás irányára (x) merőleges felületi vetülete

$$\left(\frac{dc}{dt}\right)_V \approx \frac{J_{i,x} - J_{i,x+\Delta x}}{\Delta x}$$

A terjedési függvény részei

Diffúzió – behelyettesítjük az áramsűrűségeket

$$\left(\frac{\partial c}{\partial t}\right)_V = \frac{\partial}{\partial x}\left(D_x \frac{\partial c}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(D_y \frac{\partial c}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(D_z \frac{\partial c}{\partial z}\right)$$

Ha a rendszer homogén, D nagy térfogatban konstans, és így kiemelhető:

$$\frac{dc}{dt} = D \cdot div(grad(c)) = D \cdot \nabla^2 c = D \cdot \Delta c$$

A differenciákra felírt egyenletet mindhárom térirányba kiterjesztve Fick II. törvényét kapjuk. Homogén rendszer esetén a „D” diffúziós együtthatók konstansok és egymással egyenlők a 3 térirányban. „Hordozós” radioaktivitás: radioaktív koncentrációt határozunk meg, de az inaktív anyagra vonatkozó diffúziós együtthatót érvényesnek tekintjük a radionuklidokra is.

A terjedési függvény részei

Diffúzió két nem elegyedő közeg (fázis) határfelületén

$$J_{i,x|x=\delta} = -D \cdot \frac{c_\delta - c_0}{\delta} = \frac{D}{\delta} \cdot (c_0 - c_\delta)$$

Fick I. törvényét felírva egy mátrix (elegy, oldat) belsejében és határfelületén (vagy a vele érintkező másik fázisban) fennálló c_0 és c_δ koncentrációkra a lineáris (x irányú) „Darcy-sebességet" (D/ δ [m/s]) kapjuk, ami a *megtett úttal arányosan csökken*.

A terjedési függvény további részei

- Reakció: egy komponens mennyisége egy fizikai vagy kémiai kölcsönhatás (szorpció, csapadékképzés stb.) miatt változik;
- Ülepedés: a gravitációs potenciál hatására a nagyobb sűrűségű részecskék az advekció sebességétől általában eltérő, függőleges irányban haladnak;
- Radioaktív bomlás, anya- és leányelemek időbeli változásai

Terjedés levegőben

Levegő - A Föld légkörét alkotó gázelegy.

A száraz levegő sűrűsége 1,293 kg/m^3 1,013.10^5 Pa nyomáson és 0°C hőmérsékleten; fajhője állandó térfogaton: 0,720 J/(kg K), állandó nyomáson pedig 1,007 J/(kg K);

A <u>száraz</u> levegő fő komponensei (%):

- Nitrogén N_2 78,084
- Oxigén O_2 20,946
- Argon Ar 0,934
- Széndioxid CO_2 0,033
- Neon Ne 0,0018
- Hélium He 0,000524
- Metán CH_4 0,0002
- Kripton Kr 0,000114
- Hidrogén H_2 0,00005

A <u>vízgőz</u> térfogataránya 0-4% között lehet. A száraz összetétel a földfelszíntől 20-25 km magasságig változatlan.

Levegő = homogén közeg?

Rétegek (szférák)

Kémiai rétegek:

- homoszféra <90 km magasságig
- heteroszféra ~3000 km magasságig (legfelül: H, He)

Hőmérsékleti rétegek és határhőmérsékletek:

- troposzféra (12 – 15 km-ig; -60 ^{o}C)
- sztratoszféra (50 km-ig, +10 ^{o}C)
- mezoszféra (-90 ^{o}C, 90 km-ig)
- termoszféra (ionoszféra) (2000 ^{o}C, 500 km-ig)
- exoszféra (átmegy az űrbe)

Migráció levegőben – hőmérsékleti rétegződés

Az adiabatikus hőmérsékletcsökkenés -0,5...-1,0 °C/100 m

Hajnalban a talaj hideg, a levegő melegebb – a talaj gyorsabban lehűl.

A levegőt a napsütötte talaj melegíti, a talajhoz közeli levegő felmelegszik.

Ha a talajhoz közeli hőmérsékleti rétegeződés az adiabatikusnál kisebb hőmérsékletcsökkenésű, akkor a talaj közelében keveredési réteg alakul ki.

A fel- és leszálló légáramlatok intenzív turbulenciát okoznak.

A keveredési réteg egyre nagyobb, majd este a keveredési réteg „befagy”.

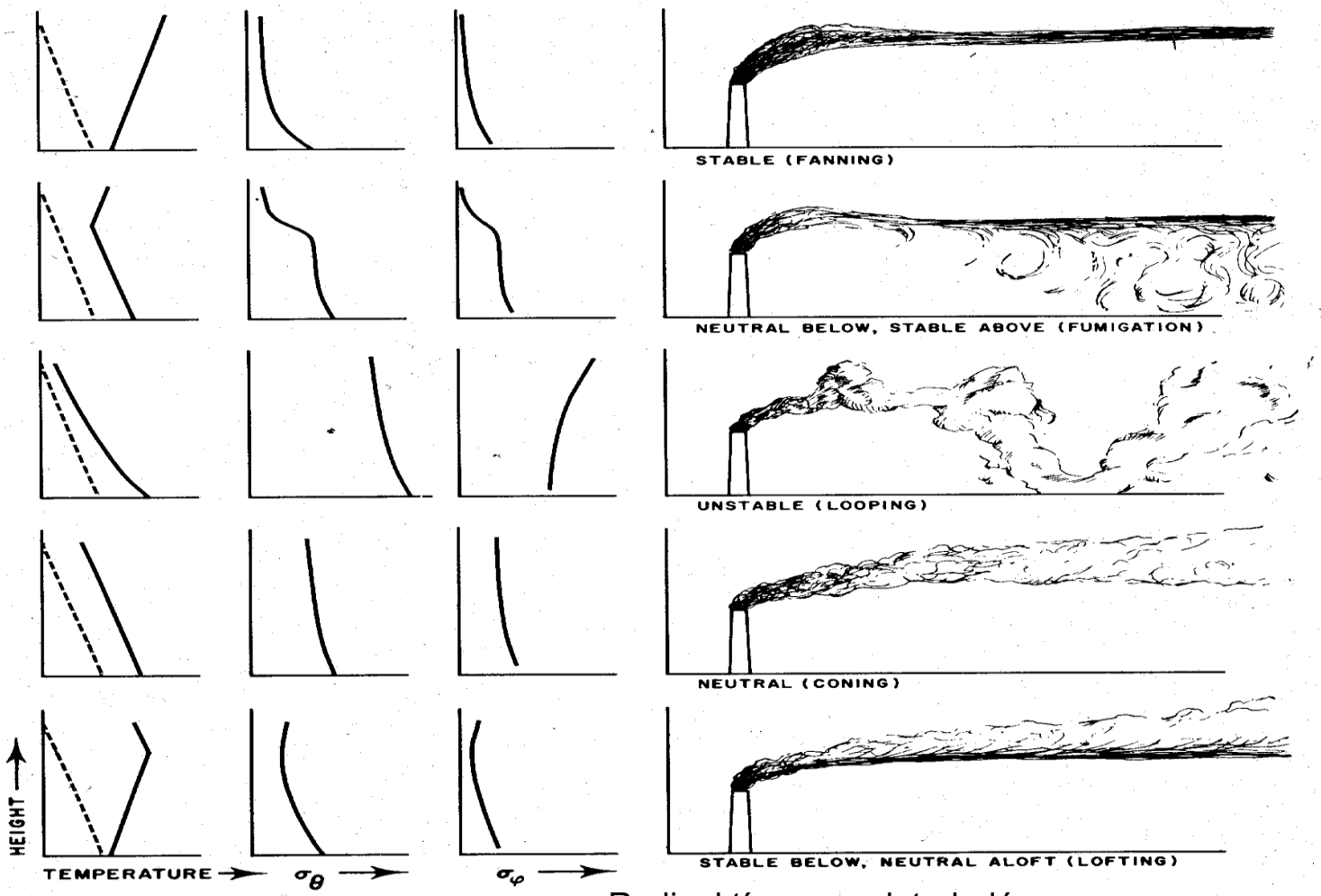
A talajkisugárzás megváltozása révén kialakul az inverzió.

Erősen stabil légrétegeződéshez derült éjszaka kell, gyenge széllel.

Erősen instabil légrétegeződéshez erős napsugárzás és legfeljebb gyenge szél kell.

A szél hatására semleges (neutrális) hőmérsékleti rétegeződés alakul ki.

Migráció levegőben – szétterülés a függőleges hőmérséklet-gradiens függvényében – lásd később: „stabilitási osztályok”



stabil

semleges - stabil

instabil

semleges

stabil - semleges

A környezetszennyezés folyamatai – összetett migráció levegőben

Homogén rendszer, „x” irányú állandó szélsebesség.

A kémiai potenciálhoz rendelhető (diffúziós) Darcy-sebesség azonos nagyságrendű is lehet az advekciós (gravitációs és termodinamikai) potenciál által definiált szélsebességgel.

Ülepedés számottevő lesz, ha a szennyezés nehéz gáz vagy aeroszolhoz kötött

$$\frac{\partial c}{\partial t} = (\dot{q}) - u_x \frac{\partial c}{\partial x} + \left[\frac{\partial}{\partial x}\left(D_x \frac{\partial c}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(D_y \frac{\partial c}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(D_z \frac{\partial c}{\partial z}\right)\right] - \alpha c - \lambda c$$

időben változó forrástag	advekció	diffúzió	ülepedés és ra. bomlás

A szélirány „x”

Migráció levegőben - „csóva” (plume) modell

Integrálás és átrendezés után - rövid ideig tartó, homogén (állandó áramú) kibocsátás terjedése mindvégig „x” irányba fújó, „u” sebességű széllel

$$c = \frac{\dot{Q}}{2\pi\sigma_y\sigma_z u} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \left\{\exp\left[-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right]\right\} \cdot \exp\left(-\frac{(\alpha+\lambda)x}{u}\right)$$

központi „doboz” homogén koncentrációval, ez Gauss-függvények szerint csökken a csóvatengelyektől távolodva

$\dot{Q}$ állandó (átlagos) kibocsátott anyagáram [Bq/s]

σ_y, σ_z :a diffúziót (diszperziót) jellemző csóvaszélesedés [m] a diffúziós együtthatóból származtatva – <u>diszperzió</u>: a szélirány ingadozását a diffúzió részeként értelmezzük

h : effektív kéménymagasság [m] – ahol a szennyezés csóvája „befordul” az x irányba – kémény + <u>csóvaemelkedés</u>; összeg: visszapattanás a talajról

Ülepedés: „véletlenszerű” fogyás

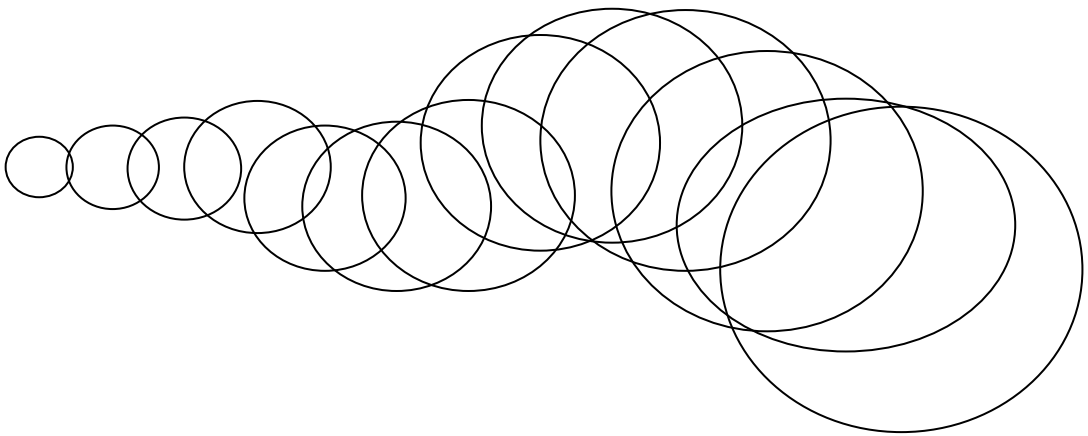
Migráció levegőben - „csóva” (plume) modell

Energetikai (kinetikai/termikus) jellemzők – a csóvaemelkedést → az effektív kéménymagasságot meghatározó tényezők

- Kinetikus és termikus energiával nem rendelkező kibocsátás (hideg szivárgás)
- Kinetikus energiával rendelkező kibocsátás (szellőzőrendszer kéménye)
- Termikus energiával rendelkező kibocsátás („rezsó")
- Termikus és kinetikus energiával rendelkező kibocsátás (hőerőmű kéménye)

Migráció levegőben - „pöff” (puff) modell

Pillanatszerűen kibocsátott „szennyezésadag” szétterülése szélirány- és szélsebesség-változásokkal az előző és következő adagoktól függetlenül

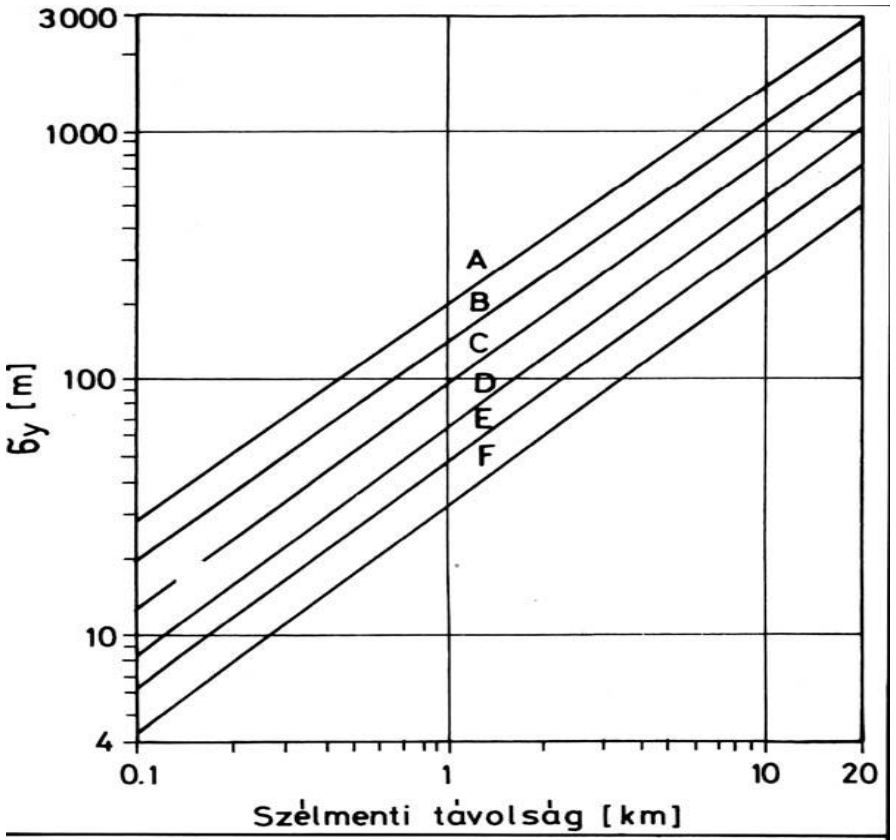


Q: a pöffbe került radioaktív szennyezés [Bq]
σ_y: x- és y-irányban azonos, távolságfüggő diszperziós paraméter

$$c = \frac{Q}{(2\pi)^{3/2}\sigma^2{}_y\sigma_z}\exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma_y^2}\right)\exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right)\left\{\exp\left[-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right]\right\}\cdot\exp(-(\alpha+\lambda)t)$$

A pöff pillanatnyi helyzetét a fenti egyenlettől <u>független</u> (külön meghatározandó) „útfüggvény” határozza meg. A fiktív „központi doboz” koncentrációja itt is a diszperziós paraméterektől függ.

Migráció levegőben – diszperziós együtthatók



2. ábra: A vízszintes szóródási együtthatónak (σ_y) a szélmenti távolságtól való függése

Pasquill-kategóriák: a szélsebességre merőleges irányú kiterjedés = diszperzió típusai

A hőmérséklet-gradiens és a szélsebesség függvényei

F: a „legstabilabb” légköri állapot

Közép-európai átlag: D

Csóva- és pöff modell
Pasquill-kategóriák a diszperzió mértékére

A diszperziós állandók értékei (Hanna, 1982)
100 m < x < 10 km

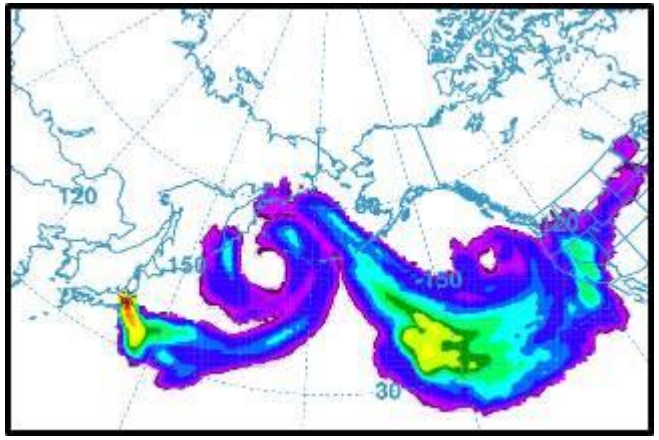
Stabilitási osztály	σ_y (m)	σ_z (m)
	a szabadban	
A	$0{,}22x\,(1 + 0{,}0001x)^{-1/2}$	$0{,}20x$
B	$0{,}16x\,(1 + 0{,}0001x)^{-1/2}$	$0{,}12x$
C	$0{,}11x\,(1 + 0{,}0001x)^{-1/2}$	$0{,}08x\,(1 + 0{,}0002x)^{-1/2}$
D	$0{,}08x\,(1 + 0{,}0001x)^{-1/2}$	$0{,}06x\,(1 + 0{,}0015x)^{-1/2}$
E	$0{,}06x\,(1 + 0{,}0001x)^{-1/2}$	$0{,}03x\,(1 + 0{,}0003)^{-1/2}$
F	$0{,}04x\,(1 + 0{,}0001x)^{-1/2}$	$0{,}016x\,(1 + 0{,}0003)^{-1/2}$
	városi környezetben	
A-B	$0{,}32x\,(1 + 0{,}0004x)^{-1/2}$	$0{,}24x(1 + 0{,}001x)^{-1/2}$
C	$0{,}22x\,(1 + 0{,}0004x)^{-1/2}$	$0{,}20x$
D	$0{,}16x\,(1 + 0{,}0004x)^{-1/2}$	$0{,}14x\,(1 + 0{,}0003x)^{-1/2}$
E-F	$0{,}11x\,(1 + 0{,}0004x)^{-1/2}$	$0{,}08x\,(1 + 0{,}0015x)^{-1/2}$

A stabilitási tényező meghatározása:

- Besugárzás (nap szöge + felhőzöttség) + szél
- Függőleges hőm. gradiens + szél
- Sugárzásegyenleg + szél
- Szélirányfluktuáció

Sztochasztikus modellek a levegőben történő terjedés leírására

Migration of airborne particles are calculated by setting probabilities for their movements segmented in time and/or space; movements are defined by vectors = potential gradients (random displacement method).



- **HYSPLIT**: Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model developed by NOAA's Air Resources Laboratory (USA), is one of the most widely used models for atmospheric trajectory and dispersion calculations. (Applied for radionuclides, wildfire smoke, allergens, volcanic ash)
- Lagrangian Stochastic Particle Dispersion Model (**LSPDM**) also capable of back projection = receptor-oriented inverse mode

$$
\begin{aligned}
x(t+\Delta t) &= x(t) + [u(t) + u_r(t)]\Delta t \\
y(t+\Delta t) &= y(t) + [v(t) + v_r(t)]\Delta t \\
z(t+\Delta t) &= z(t) + [w(t) + w_r(t)]\Delta t
\end{aligned}
\qquad (1)
$$

x,y,z: particle positions; u's: predicted mean components of velocity (advection, diffusion = Darcy velocity, precipitation; t: time; probabilistic approach

Dózisszámítás a levegőben végbemenő terjedést követően

A belélegzési dózis arányos a levegőben fennálló koncentráció integráljával

$Q_{be}(x)$: a kibocsátási forrástól való távolságtól függő, a talajszinten tartózkodó személy által belélegzett (és a légutakon megkötött) aktivitás [Bq]

$\dot{W}$: állandónak tekintett légzési sebesség [m^3/h]

e(g): belső sugárterhelés dózistényezője (korábbi jelöléssel DCF = dose conversion factor)

j: életkori csoport jelzése

$$H_E(x) = \int c(x,t)dt \cdot \dot{W} \cdot e(g)_{lég,j}$$

$$H_E(x) = Q_{be}(x) \cdot e(g)_{lég,j}$$

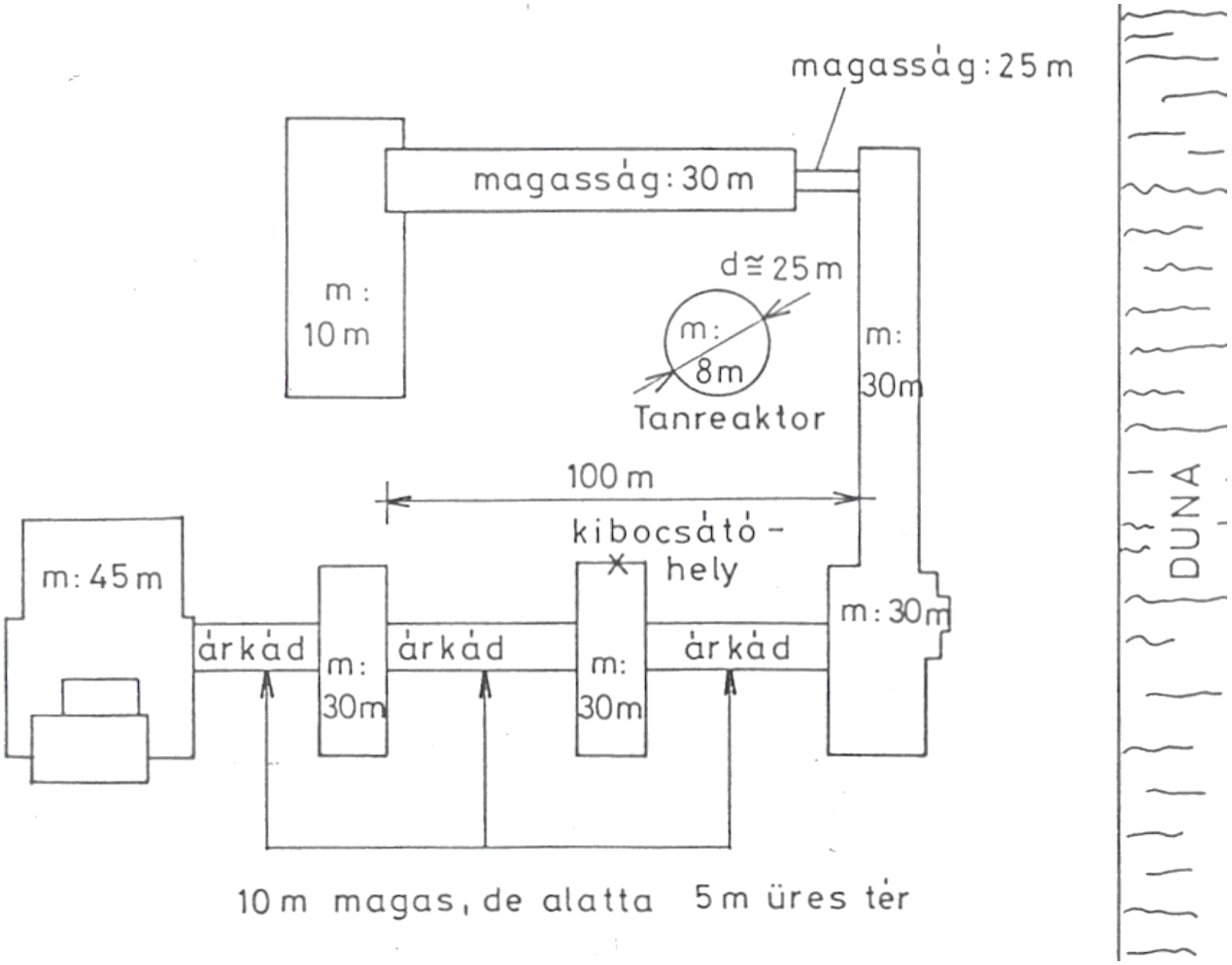
A levegőben fennálló koncentrációhoz az arra haladó felhőn kívül a kihullás, a felületeken történő megkötődés és a reszuszpenzió is hozzájárulhat. A fenti számítást minden radionuklidra és korcsoportra külön-külön el kell végezni.

Példa: BME OR légköri kibocsátási határértékeinek meghatározása

A 15/2001. KöM rendelet származtatott kibocsátási határértékek meghatározására kötelezte az engedélyeseket, ezekhez a hatóság (OAH) által elfogadott lakossági dózismegszorításból (= 50 μSv/év) kell kiindulni.

A kibocsátási határértéket minden kibocsátási módra és minden radionuklidra származtatni kell.

BME OR - kibocsátási határértékek



BME OR - kibocsátási határértékek

Kibocsátási adatok

A kibocsátási pont a T épület tetején levő kémény. A kémény magassága az épület tetejétől 5 m, így az effektív kibocsátási magasság 35 m. A szellőztető levegőben csak ^{41}Ar nemesgáz mérhető, a keletkező aktivitás arányos a reaktor teljesítményével. A reaktor évente nem több, mint 1000 órát üzemel, amelyből a 100 kW-os üzem nem több, mint 50 óra. Az előírt átlagos légforgalom 11000 m^3/h.

Receptorpontok

A kibocsátási ponttal közel azonos magasságú épületek perturbáló hatása miatt az épületek közötti térrészben tartózkodók dózisbecslésére a nagyobb távolságokra kidolgozott terjedési modellek nem alkalmazhatók. Konzervatív forgatókönyv: a Budapesten leggyakoribb ÉNy szél a csóvát befújja a reaktor körüli térrészbe. A kibocsátási pont 50 méteres környezetében tartózkodók képezik az egyik kritikus csoportot.

Mivel az egyetem telephelyét sűrűn lakott területek veszik körül, így a dózisokat a kibocsátási ponttól 300 m-re tartózkodókra vonatkozólag is kiszámolták = másik kritikus csoport.

BME OR - kibocsátási határértékek

Meteorológiai adatok

Az OMSZ 100 éves szélirány-gyakoriság eloszlási adataiból – maximális gyakoriság: ÉNY 32 %

A szélsebesség átlaga : 2,3 m/s.

Közeli receptorpont

A csóva- és pöff modellek nem alkalmazhatók, mert „túl rövid” a távolság a Gauss-profilok kialakulásához. Empirikus modellt és/vagy szélcsatorna-kísérletek eredményeit lehet felhasználni.

BME OR - kibocsátási határértékek – közeli receptor pont

$$c_i = \frac{\dot{Q}_i}{A \cdot u_d} \cdot B \cdot \frac{\tau_r}{\kappa_r}$$

H – a kibocsátási magasság a talajszint felett [m]
c – radioaktív koncentráció [Bq/m^3]
u_d – a receptorpont felé mutató szélsebesség [m/s]
A – az épület térhatároló felülete [m^2] = L.W

$\dot{Q}$ – kibocsátási sebesség [Bq/s]
a kifejezés első tagja: „keverődoboz”, a második tag: „korrekciós tényező”
B – alakfaktor, általában 0,5
τ_r – normált tartózkodási idő a leáramlási tartományban [-] (lásd tovább)
κ_r – normált „leáramlási” hossz [-] (lásd tovább)

c_i = aktivitáskoncentráció a receptorpontban [Bq/m^3]

BME OR - kibocsátási határértékek – közeli receptor pont

$$\kappa_r = \frac{L_f}{H} \approx \frac{1{,}8\frac{W}{H}}{\left(\frac{L}{H}\right)^{0{,}3} \cdot (1 + 0{,}24\frac{W}{H})}$$

$$\tau_r = \frac{u_d \cdot T_r}{H} \approx \frac{11\left(\frac{W}{H}\right)^{1{,}5}}{1 + 0{,}6\left(\frac{W}{H}\right)^{1{,}5}}$$

T_r – tényleges tartózkodási idő a leáramlási tartományban [s]
L_f – a tényleges áramlási hossz [m]
W – az épület szélessége [m]
L – az épület magassága [m]

κ, τ: dimenzió nélküli paraméterek (normált „leáramlási” hossz; normált tartózkodási idő a leáramlási tartományban).

BME OR - kibocsátási határértékek – távoli receptor pont

Az egyetem körüli lakosság dózisterhelésének becsléséhez a terjedési számításokat a kibocsátási ponttól 300 méterre felvett pontban, Gauss-csóvamodellel (plume) végezték, folyamatos kibocsátást feltételezve.

Az átlagos levegőaktivitás-koncentrációból mindkét receptorpontra számítógépes programmal <u>külső gamma dózist</u> (^{41}Ar) számoltak (maximális dóziskövetkezményhez vezető útvonal).

BME OR - kibocsátási határértékek – közeli receptor pont - eredmények

$\dot{Q}$ – kibocsátási sebesség : 1 Bq/s

κ_r – számított normált „leáramlási” hossz: 0,952.

τ_r – normált tartózkodási idő a leáramlási tartományban: 4,51.

L_r a tényleges áramlási hossz: 28,5 m.

T_r - a tényleges tartózkodási idő : 58,8 s.

c – a számított aktivitáskoncentráció 1 Bq/s-nél **$1{,}7.10^{-3}$ Bq/m^3**

A ^{41}Ar-ra vonatkozó származtatott külső dózistényező nagy kiterjedésű sugárforrásra **$1{,}3.10^{-14}$ (Gy/s) / (Bq/m^3)**

Így 1 Bq/s névleges kibocsátási sebességnél a becsült dózisteljesítmény $2{,}2.10^{-17}$ Sv/s, az évi 50 μSv-es dózismegszorításhoz 50 óra maximális teljesítménnyel számított évi ^{41}Ar-kibocsátás : $2{,}3.10^{12}$ Bq.

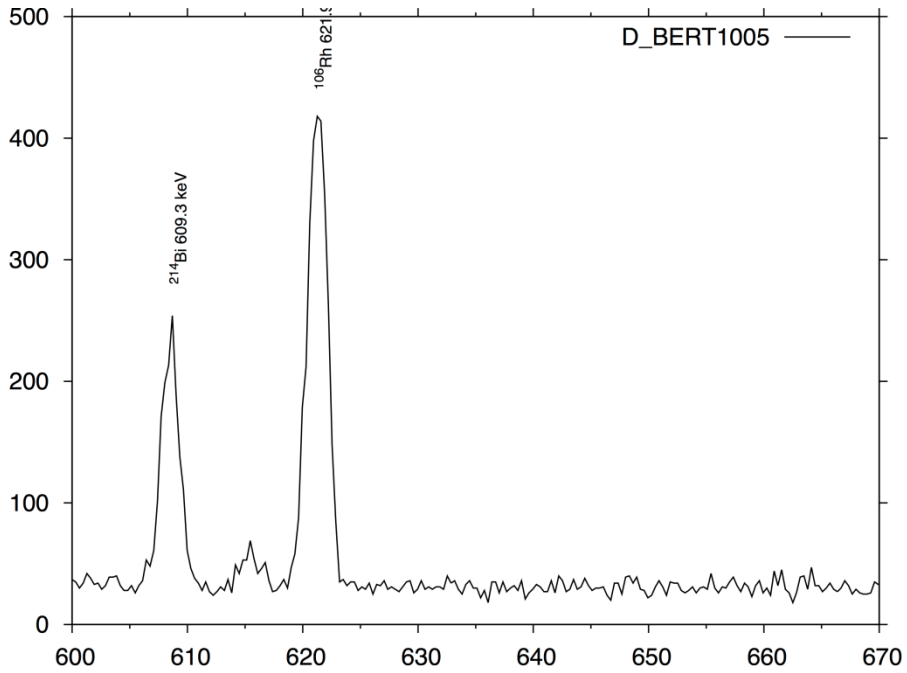
BME OR - kibocsátási határértékek – távoli receptor pont - eredmények

A kibocsátási ponttól 300 m-re (Egry József utcában) tanuló általános iskolás gyermekek dózisát az évi 50 μSv-es dózismegszorításnak tekintve a számított évi ^{41}Ar-kibocsátás $1{,}5.10^{15}$ Bq.

<u>Összegzés:</u> A két bemutatott számításból kapott érték minimuma = **<u>$2{,}3.10^{12}$ Bq</u>** a kibocsátási határérték alapja. (Hatósági határérték: ezt még elosztották 3-mal: „biztonsági tényező”)

Környezeti monitorozási tapasztalat 2017 szeptember végén Közép-Európában

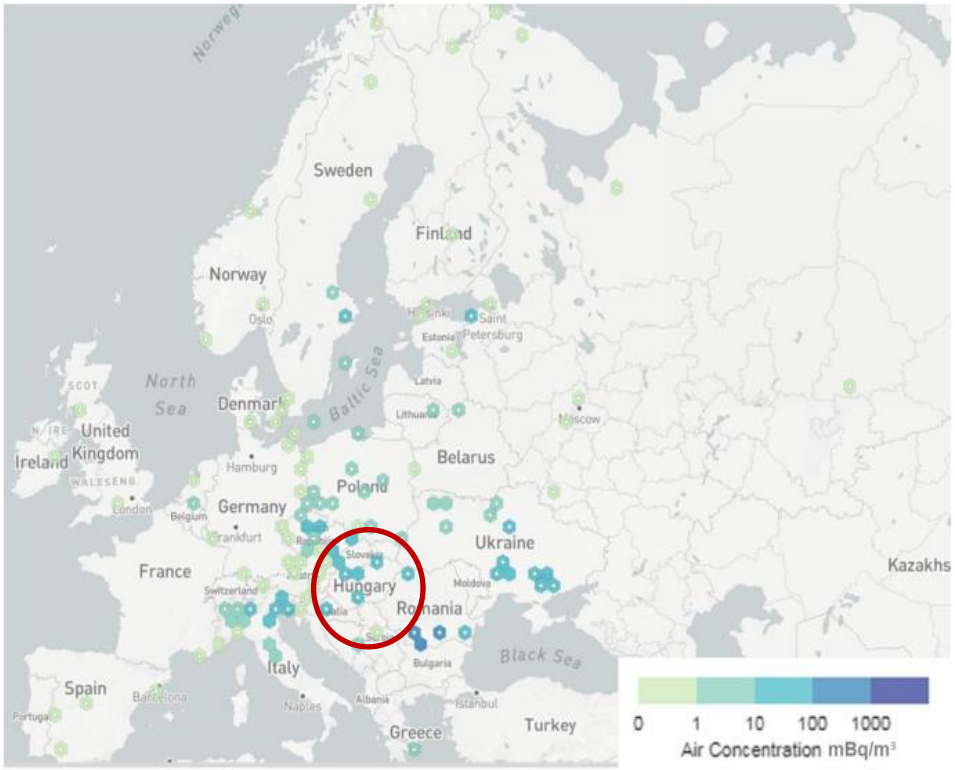
^{106}Ru/^{106}Rh-t detektáltak környezeti mintákban a természetes radioaktivitás mellett, annál nagyságrendekkel kisebb mennyiségben

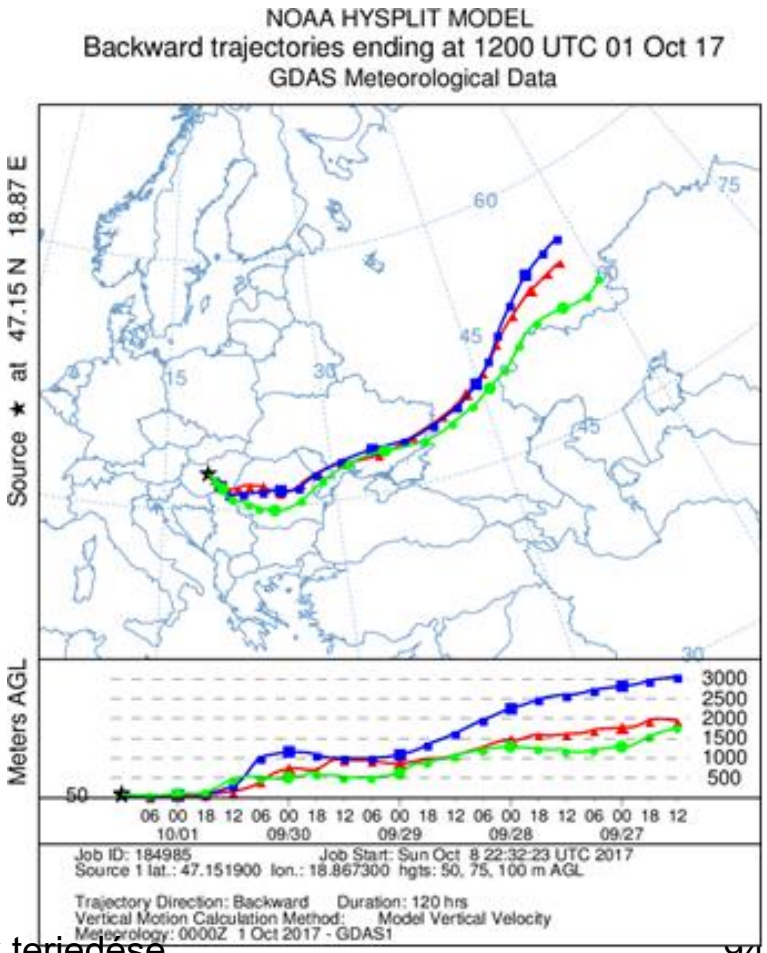


Valószínű ok: brachyterápiás sugárforrásokat előállító radiokémiai laboratórium kibocsátása és terjedése a légkörben; „…could be generated from southern regions of Ural or located close to those” (IRSN)

A dóziskövetkezmény Magyarországon <100 nSv

^{106}Ru detektálása Európában 2017 szeptember végén





„Back projection” az európai (itt: magyarországi) mérési eredményekből: a kibocsátás helyének becslése az inverz terjedési függvényből, különböző kibocsátási magasságokat feltételezve.

Terjedés homogén vizes közegben

Homogén vizes közegek = Felszíni- és karsztvizek

Csoportosításuk terjedési sajátosságaik = modellezési típusaik szerint:

1) Folyók [rivers] – jellemzők: hőmérséklet, folyóágy geometriája, esés, térfogatáram, kapcsolat a talajvízzel [intrusion = behatolás], lebegő szennyezések
2) Torkolatok [estuaries] – jellemzők: folyók jellemzői és sókoncentráció (szalinitás), üledékképződés
3) Nyílt víz/nyílt part (tó, tenger, óceán) [open shores] – jellemzők: szalinitás, ár-apály mozgások, stagnálás, hőmérsékleti rétegződés
4) Tározók [ponds] = kis, főként mesterséges tavak – jellemzők: ki- és befolyás mértéke, mesterséges vízhasználat

Terjedés homogén vizes közegben

Az advekció hajtóereje:

1) Folyók – „egyszerű” gravitációs potenciálgradiens
2) Torkolatok – 1) + árapály
3) Nyílt parti vizek – árapály + hőmérsékleti rétegződés
4) Tározók – termodinamikai potenciálgradiens + hőmérsékleti rétegződés

A diffúzió hajtóereje: kémiai potenciál gradiense – a diffúziós együtthatók főként inaktív vegyületekre érhetők el, nem pedig hordozómentes radioaktív anyagokra!

Terjedés homogén vizes közegben

Szennyezés terjedése folyókban – felosztás modellezési szakaszokra:

- 1. fázis: kezdeti keveredési tartomány = a beömlési sebességvektor iránya különbözik a folyási sebesség vektorának irányától, az effluens és a befogadó közeg hőmérséklete eltérő lehet. Érvényesség: beömléstől ≤ 100 ágymélységnyi távolságra [near-field], modellezés igen nehéz

- 2. fázis: teljes keveredés tartománya = a szennyezés már együtt halad a folyóval, de még nem volt elég idő reakciók végbemenetelére
Érvényesség: 1. fázistól ≤ 10 - 20 km-ig [full mixing] („teljes” keveredés = függőleges szelvényekben, nem keresztirányban) – modellszámítás lehetséges

- 3. fázis: hosszú távú keveredés tartománya = reakció (adszorpció stb.) és ülepedés jelentősen megváltoztathatja a szennyezés eloszlását [far-field]
Érvényesség: 20 km-en túl, modellszámítás lehetséges

Folyók általános áramlási viszonyai: lamináris (réteges) vagy turbulens (örvénylő) áramlási profil.

Terjedés homogén vizes közegben

Szennyezés terjedése folyókban – 2. fázis

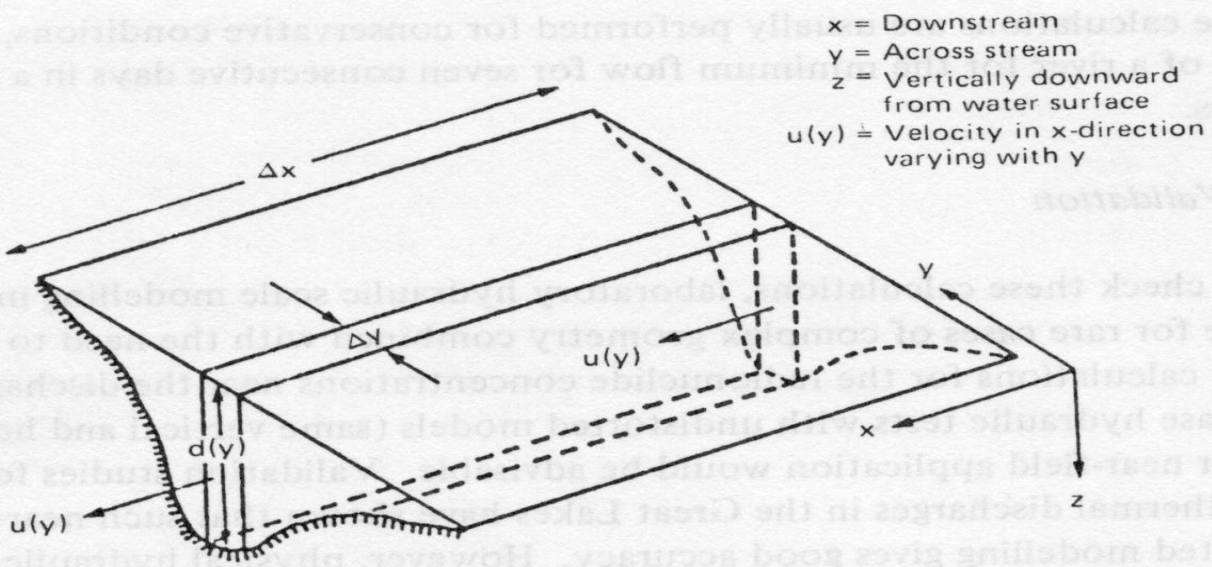


FIG.1. Model of a river cross-section (adapted from Ref.[4]).

x: folyási irány, y: keresztirány, z: függőleges irány
u (y): x irányú folyási sebesség, függ y-tól

Terjedés folyókban

$$\frac{\partial c}{\partial t} = A + D(+S(t)) - \lambda c$$

2. terjedési fázis: Az advekció és a diffúzió okoz (valamint a változó forrástag) koncentrációváltozást.

Térben inhomogén, időben stacionárius eset: állandó forrástag, a koncentráció adott helyen az időben változatlan.

A lamináris és a turbulens áramlás közötti különbséget a diffúziós együttható számértékén át jelzik.

Turbulencia: az advekció „felerősíti" a diffúziós hatást – indikátor: Reynolds-szám

$$\frac{\partial c}{\partial t} = 0 = -u_x \cdot \frac{\partial c}{\partial x} + D_L \cdot \left(\underbrace{\frac{\partial^2 c}{\partial x^2}}_{\approx 0} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \underbrace{\frac{\partial^2 c}{\partial z^2}}_{\approx 0}\right) - \lambda c$$

z irányban már kialakult a teljes keveredés, x irányban a folyási sebességhez képest elhanyagolható a diffúzió (Darcy-sebesség << u_x)

Terjedés folyókban

Terjedési egyenlet átírása térfogatáramra:

Bevezetjük h(y)-t, a keresztirányú koordináta függvényében változó ágymélységet.

<u>Egyszer (keresztirányban) differenciális térfogatáram-elem</u> (a „sodrásban”): dw

$$dw = u_x \cdot h(y) \cdot dy$$

és

$$w(y) = \int_0^y u_x \cdot h \cdot dy$$

w(y): rész-térfogatáram 0 és y között

Terjedés folyókban

dy helyére dw-t helyettesítünk, és kifejezzük

$\frac{\partial c}{\partial x}$ -et: $$\frac{\partial c}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial w} \cdot \left(D_L \cdot u \cdot h^2 \cdot \frac{\partial c}{\partial w} \right) - \frac{\lambda}{u} c$$

Lamináris (örvénymentes) áramlást mutató folyóknál képezhető a térfogatáramra átlagolt, a folyó teljes térfogatára érvényes diffúziós együttható

$$\tilde{D} \approx \frac{1}{W} \cdot \int_0^W D_L u h^2 dw$$

innen $$\frac{\partial c}{\partial x} = \tilde{D} \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial w^2} - \frac{\lambda}{u} c$$

Terjedés folyókban

A differenciálegyenlet megoldása az alábbi alakra vezet:

$$c(x,w) = \frac{\dot{Q}}{W}\left[1 + 2 \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left(\frac{-n^2\pi^2\tilde{D}x}{W^2}\right) \cdot \cos\frac{n\pi w_s}{W} \cdot \cos\frac{n\pi w}{W}\right] \cdot \exp\left(-\lambda\frac{x}{\bar{u}}\right)$$

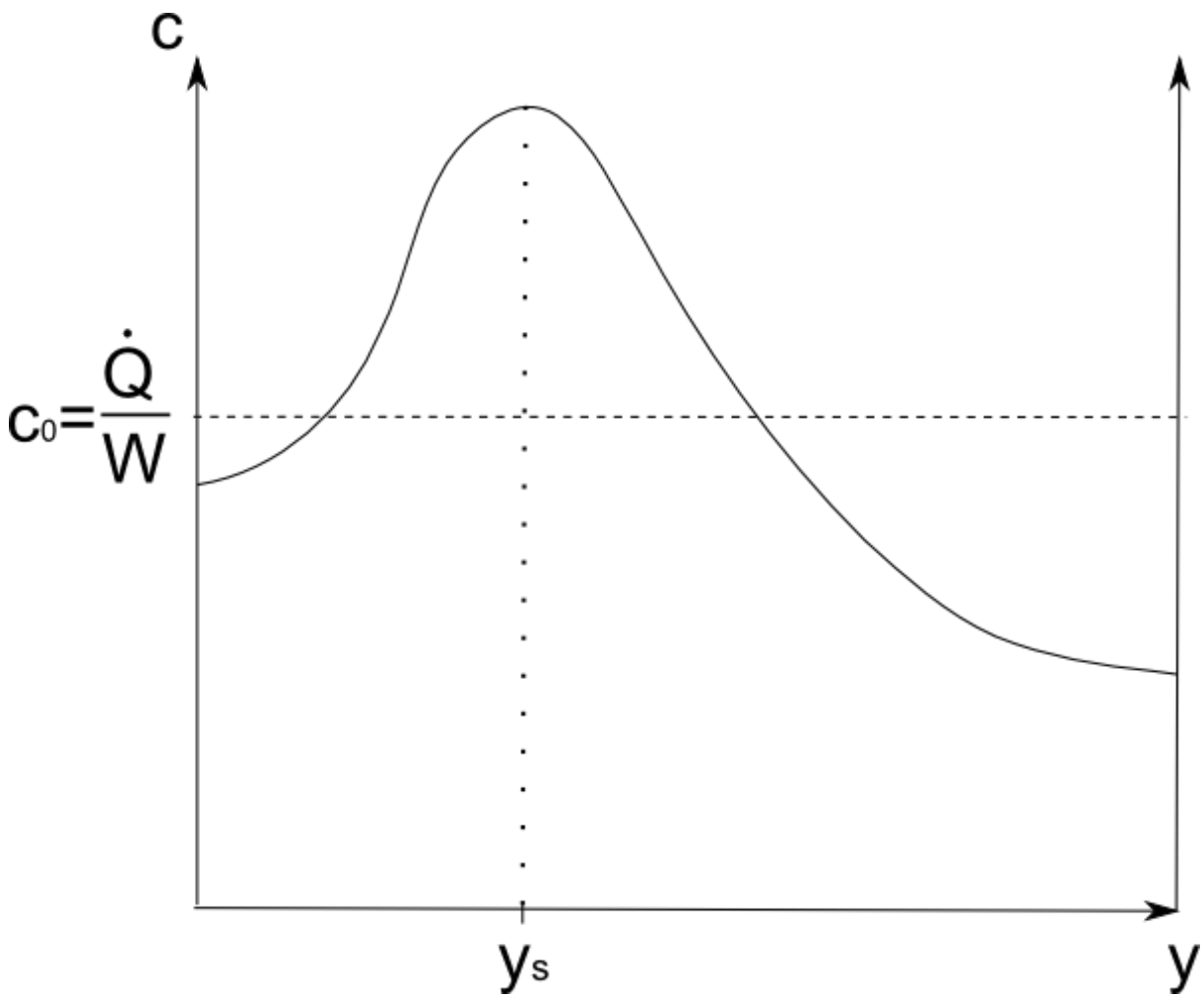
$$\frac{\dot{Q}}{W} = c_0$$

Q(pont): a szennyezés (effluens) befolyási sebessége [Bq/s]
W: a folyó térfogatárama [m^3/s]
A szennyezés „pontszerűen” jut a folyóba x=0 és $y=y_s$ koordinátáknál
A befolyási ponthoz w_s rész-térfogatáram tartozik
n a természetes számok sorozata
Nincs „kilépés” a partokon és a talajvízbe

„tartály” állandó ki- és beömléssel c_0 az átlagos aktivitás-koncentráció

$$w_s = \int_0^{y_s} u \cdot h \cdot dy$$

Terjedés folyókban



Az előző számítási modell grafikus képe – a szennyezés befolyási pontja x=0 $y=y_s$

Terjedés folyókban

„Vonalmenti” (kiterjedt) szennyezésforrás: a szennyeződés nem pontszerűen, hanem az y_{s1} és y_{s2} koordináták között érkezik a beömlésnél – a folyó ezekhez tartozó rész-térfogatáramai: w_{s1} és w_{s2}

$$c(x,w) = \frac{\dot{Q}}{W}\left[1 + 2\cdot\sum_{n=1}^{\infty}\exp\left(\frac{-n^2\pi^2\tilde{D}x}{W^2}\right)\cdot\frac{\sin(n\delta)}{n\delta}\cdot\cos\left(\frac{n\pi}{2}\right)\cdot\frac{w_{s1}+w_{s2}}{W}\cdot\cos\frac{n\pi w}{W}\right]\cdot\exp\left(-\lambda\frac{x}{\bar{u}}\right)$$

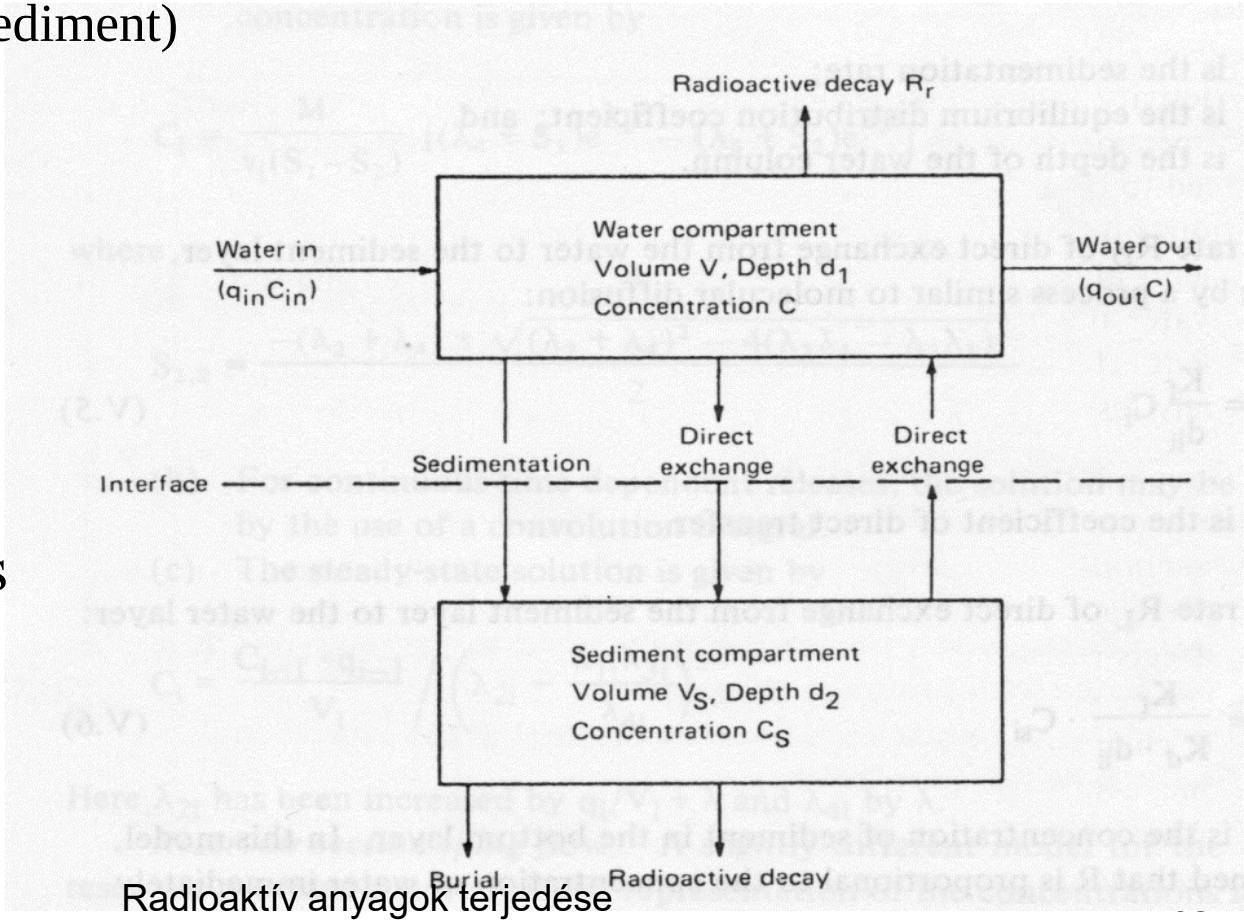
ahol

$$\delta = \frac{\pi}{2}\cdot\left(\frac{w_{s2}-w_{s1}}{W}\right)$$

Terjedés folyókban – reakció és ülepedés a 3. terjedési fázisban

Megoszlás a folyadékfázisban oldott és a lebegő szennyezésből lassan keletkező üledékhez (s = sediment) kötött szennyezés között
Stacionárius esetben:
C/C_s állandó

Megoszlás két homogénnek tekintett kompartment („víz” és „üledék”) között



Terjedés folyókban

Az advekciós-diffúziós modell bővítése a 3. fázisban:
Felületi reakció (adszorpció) lebegő anyagon

$$\left[\frac{\partial c_i}{\partial t}\right]_s = K_s \cdot p_s \cdot \alpha \cdot c_i \qquad K_s = \left(\frac{c_{i,S}}{c_{i,L}}\right)_{eq.}$$

K_s: a szennyező komponens egyensúlyi megoszlási hányadosa a szilárd (S) és a víz (L) közegek között – [(Bq/kg)/(Bq/m^3)]
p_S: a szilárd (lebegő) szorpcióra képes anyag koncentrációja a vízben [kg/m^3]
α: a szorpció hőmérsékletfüggő sebességi állandója (időegység alatt bekövetkező szorpció valószínűsége) [s^{-1}]

Ezt az összefüggést használva feltételezzük, hogy az ülepedő szilárd anyag felületén az aktív helyek egyenrangúak, betöltésük véletlenszerű. A szorpció lehetséges mechanizmusainak részletes tárgyalása a talajvíznél következik.

Terjedés folyókban

Néhány, a folyókra jellemző terjedési adat:

Folyási (advekciós) sebességek : 0,1 – 2 m/s

Térfogatáramok: Duna (magyar szakasz): 2400 [800 – 9000 m^3/s között]

Tisza: 820 [100 – 4700] m^3/s

Diffúziós együtthatók ionos oldott anyagokra a folyóvizekben: 0,5 – 5.10^{-9} m^2/s

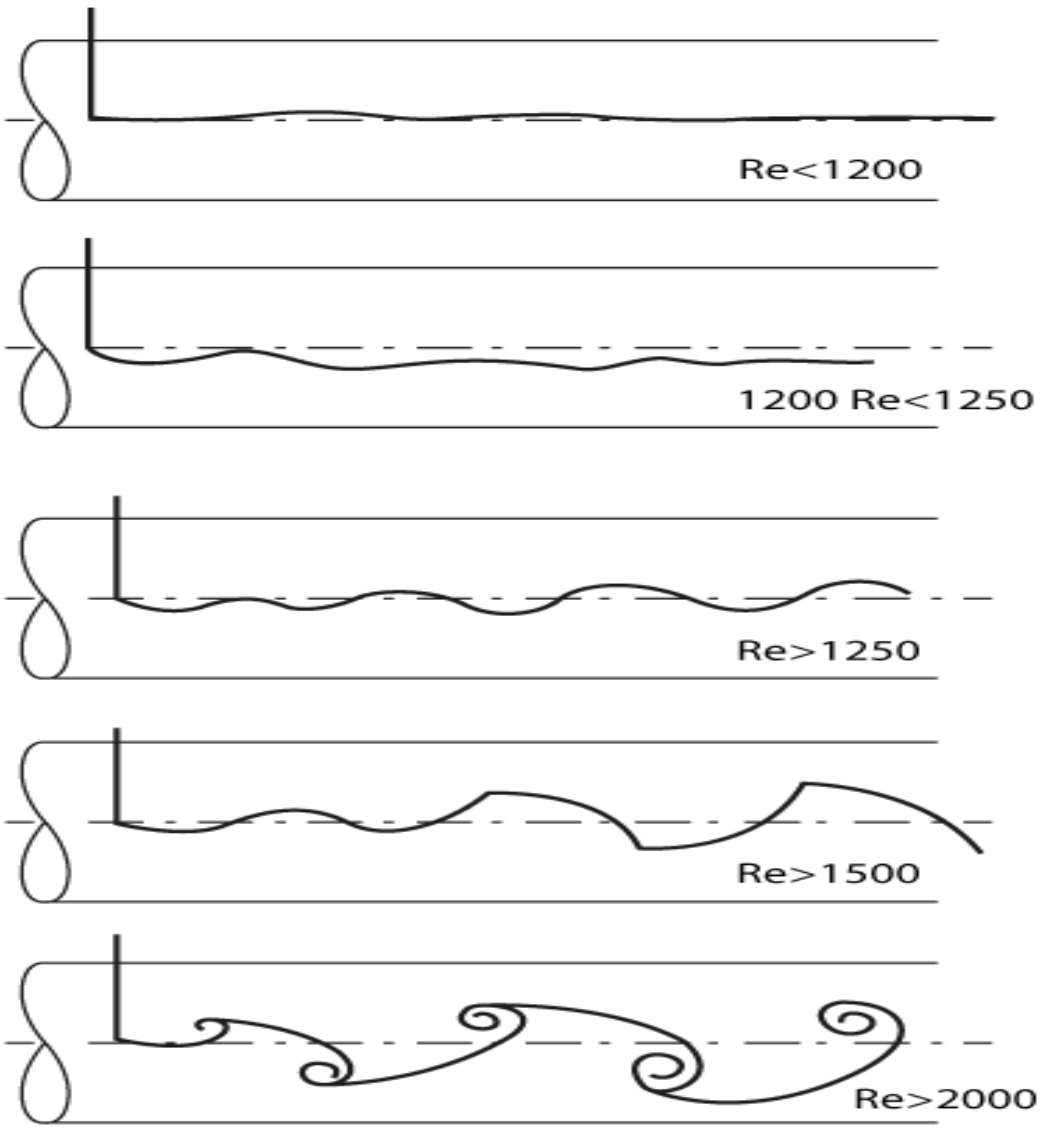
Lamináris vagy turbulens áramlás → Reynolds-szám

$$\mathrm{Re} = \frac{d_{eq.}.v.\rho}{\eta} \qquad d_{eq.} = 4.\frac{A}{P_w}$$

Kritikus érték csőben 2300, síklapon 10^5.

A kinetikai és a súrlódási energia aránya; η: dinamikus viszkozitás, P_w: nedvesített kerület
A: áramlási keresztmetszet
v: lineáris áramlási sebesség

Lamináris és turbulens áramlás (advekció) jellemzése a Reynolds-számmal

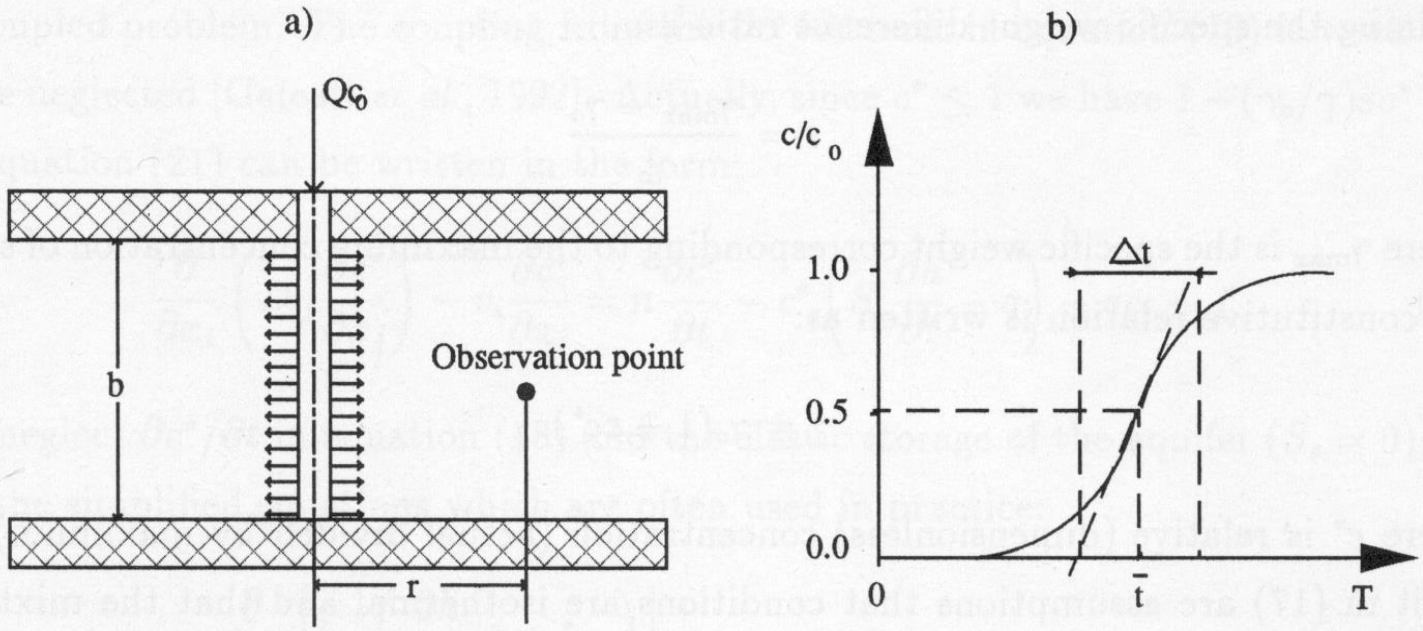


$$Re = \frac{d_e \cdot v^2 \cdot \rho}{\eta \cdot v} = \frac{d_e \cdot v \cdot \rho}{\eta}$$

=a mozgási és a súrlódási energia hányadosa

http://www.tankonyvtar.hu/hu/tartalom/tamop412A/2011_0059_SCORM_MFKGT5051/sco_02_01.scorm

Terjedés folyókban – egyszerű áttörési (breakthrough) modell a terjedési paraméterek vizsgálatára



igure 2: Field experiment of Pickens *et al.* [1981] (a) and related breakthrough ırve (b)

Áttörési profil: folyóba juttatott szennyezés megjelenése a megfigyelési ponton
Áramlás forrása = betáplálás (A [Bq] → $Q.c_0$)
Advekció és diffúzió együttes hatása

Terjedés tározókban (kis tavakban)

Egyszerű „tartály” modell átfolyással és beömléssel:

$$c_{i,L} = c_{i,effl.} \cdot \frac{W_{effl.}}{W_{flow}} \cdot e^{-\lambda t}$$

A szennyezett effluens térfogatárama összemérhető a tó teljes átfolyásával. Teljes elkeveredést feltételezünk.
$c_{i,L}$: a tározóban kialakuló aktivitás-koncentráció

„Tartály” modell „közvetett” átfolyási jellemzőkkel, valamint adszorpcióval:

$$c_{i,L} = \frac{\dot{Q}}{k_e \cdot V}$$

$$c^*_{i,L} = c_{i,L} \cdot F_R$$

$$F_R = \frac{1}{1 + K_s \cdot p_s}$$

$$K_s = \frac{c_{i,s}}{c_{i,L}}$$

k_e: effektív cserélődési sebesség [1/óra]
F_R: adszorpció utáni „maradék” hányad
K_s: egyensúlyi megoszlási hányados (szilárd üledéken, lebegő anyagon)
p_s: az ülepedő szilárd anyag (szorbens) koncentrációja a vízben [kg/m^3]

Terjedés talajvízben

$$n \approx \frac{V_L}{V_L + V_S} = \frac{V_L}{V}$$

Porozitás: n = átjárható pórustérfogat és összes térfogat aránya („zsákutcák” nélkül) – talajokban sokkal nagyobb, mint kőzetekben.

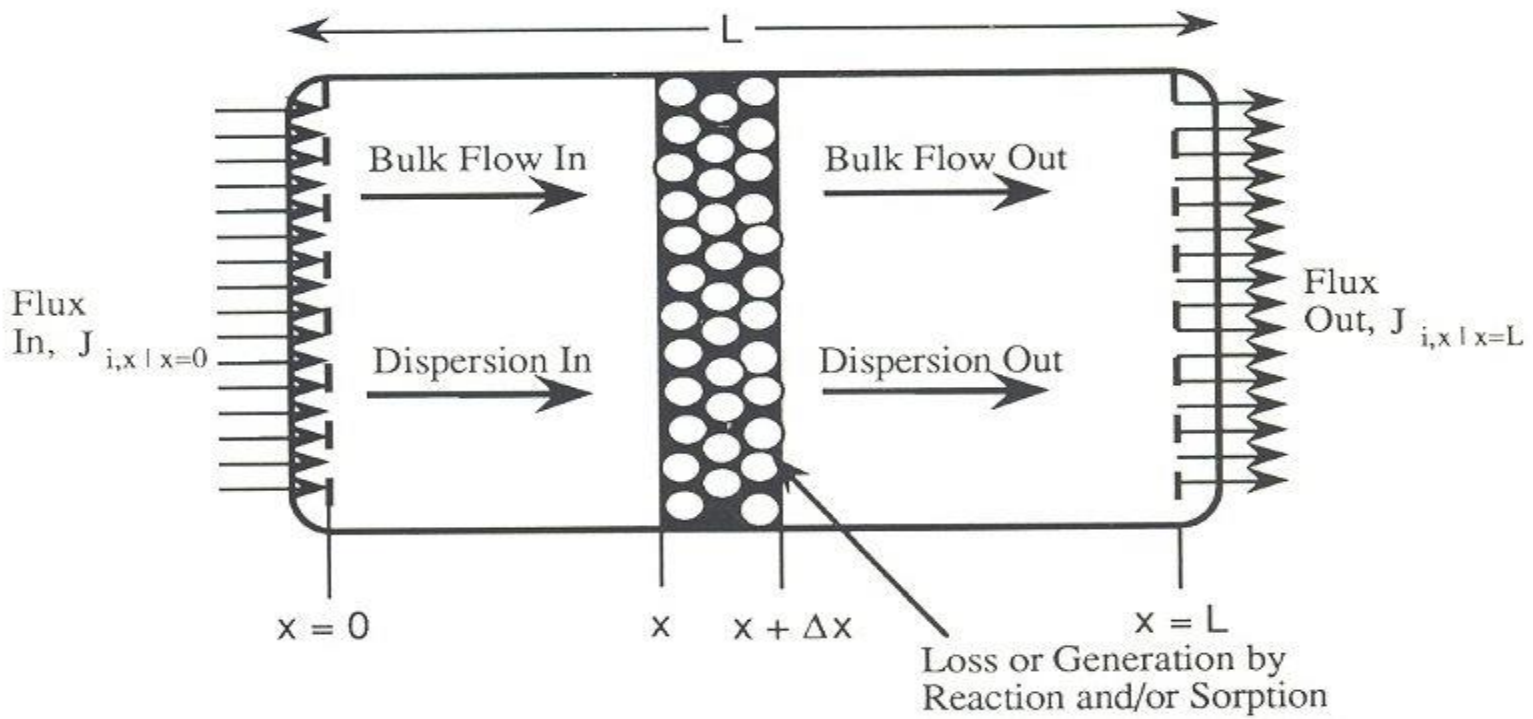
Telítettség: kétfázisú rendszer (nincs levegő a pórusokban) – a levegő jelenléte lassítaná a folyadék áramlását, ez tehát konzervatív közelítés.

A vízáramlás iránya nem határozható meg egységesen a teljes talajtérfogatra.

A vízáramlás hajtóereje a környezeti (= hidraulikus: gravitációs + termodinamikus) potenciál helyről helyre változó gradiense – advekciót (a potenciálgradiens irányában) és szétterülést (további irányokban) egyaránt okoz.

$$h = z + \frac{p}{\rho \cdot g}$$

Terjedés talajvízben



Diszperzió = Diffúzió és szétterülés (az áramlás útjába eső akadályok miatt)

Terjedés talajvízben

Két összekapcsolható terjedési egyenlet: víz terjedése a **talajban** és szennyezés terjedése a **talajvízben**

Víz terjedési differenciálegyenlete egy talajrészletre (kompartmentre):

$$S \cdot \frac{\partial h}{dt} = q + \left[\frac{\partial}{\partial x}\left(K_x \frac{\partial h}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(K_y \frac{\partial h}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(K_z \frac{\partial h}{\partial z}\right)\right]$$

advekció diffúzió → diszperzió

q: a <u>talaj</u> térfogategységére jutó <u>víz</u> térfogatárama [$(m^3/h)/m^3$] = *cserélődési hányad* [h^{-1}] – **advekciós** tag

S: térfogategységre jutó áramlási felület [m^2/m^3] = *kompresszibilitási együttható* [m^{-1}] a **porozitás** lineáris függvénye;

K_j: diszperziós együttható = **diszperzivitás** (gyakran α-val is jelölik)

A víz Darcy-sebessége:

$$v_j = K_j \cdot \frac{\partial h}{\partial j}$$

K: hidraulikus vezetőképesség = diszperzivitás [m/s] j=x,y,z

Terjedés talajvízben

Kompresszibilitási együttható S [m^{-1}]:

$$S = \rho g(\alpha + n \cdot \beta)$$

ρ: a talaj (szilárd anyag) sűrűsége
β: térfogati kompresszibilitás
α: lineáris kompresszibilitás

Diszperzivitás (hidraulikus vezetőképesség) [m/s] függ a talajvíz viszkozitásától:

$$K_j = K^* \cdot \frac{\rho g}{\eta_j}$$

η: dinamikus viszkozitás – a folyadékban az áramlás során ébredő nyíróerő [Ns/m^2]
K*: belső permeabilitási tenzor [m^2]; j=x,y,z

A porózus rendszerben nem alakulhat ki állandó, az egész rendszerre jellemző advekciós sebesség. Az állandó áramlás esete: $q_i \approx q$ konstans cserélődési hányad

Terjedés talajvízben

Egyszerűsítő feltételek a talajvízbe jutó radioaktív szennyezés terjedésének leírásához:

- A víz és az oldott anyag tökéletesen keveredik
- A porózus közeg rugalmas (az egyes pórusok térfogata változik, de az összes pórustérfogat nem) – ez a kőzetek pórusaira nem lehet alkalmazható
- Híg oldat = a víz állapotát (áramlási képességeit) nem befolyásolja az oldott szennyezés jelenléte
- A diffúzió nem különböztethető meg a kényszerdiszperziótól = szilárd szemcséket ki kell kerülni → **diszperzió**

Figyelembe vehető további hatások: szorpció, reakció, telítetlen pórusok, kapillaritás, hőmérsékletgradiens stb.

Terjedés talajvízben

Az oldott anyagra térfogatelemenként inhomogén terjedési egyenlet írható fel – egyszerű változat: csak advekció és diszperzió; kapcsolat a „vizes” egyenlettel: porozitás és cserélődési sebesség.

$$n \cdot \frac{\partial c}{\partial t} = q c_1 + \left[\frac{\partial}{\partial x}\left(\widetilde{D}_x \frac{\partial c}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(\widetilde{D}_y \frac{\partial c}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\widetilde{D}_z \frac{\partial c}{\partial z} \right) \right] - n\lambda c$$

advekció

diszperzió

$\widetilde{D}_j$

Diszperziós együtthatók: a homogén vizes oldatban érvényes diffúziós együtthatókból származtathatók

Advekciós tag: a szennyezés be-vagy kifolyása az adott térfogatelemnél

c_1: a térfogatelembe beáramló koncentráció – elemenként eltérő lehet

A szorpcióról külön értékelés következik.

Terjedés talajvízben

A terjedés modellezésében számításba vehető fizikai és kémiai reakciók, folyamatok:

- Ionok, komplexek képződése a folyadékban
- Csapadékképzés és oldhatóság
- Szorpció/deszorpció a szemcsék felületén – oldott anyag átlépése a szilárd fázisba és ennek inverze

A differenciálegyenleteket egy-egy kompartmentre lehet csak közvetlenül megoldani.

<u>kompartmentek</u> (rekeszek) ≈ <u>nódusok</u> – véges méretű térfogatelemek, melyek terjedési paraméterei ismertek és állandók (nódus: a középpontokban „koncentrálódnak” a terjedést jellemző tulajdonságok)

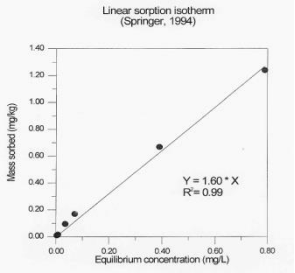
Terjedés talajvízben - szorpció

Szorpció a pórusfalon (talajszemcséknek a pórusvízzel érintkező felületein) – retenció = az oldatkoncentrációt csökkenti; azonos viselkedés (paraméterek) az inaktív és a radioaktív anyagformára.

$$\left[\frac{\partial c_i}{\partial t}\right]_s = K_s \cdot p_s \cdot \alpha \cdot c_{i,L} \qquad K_s = \left(\frac{c_{i,S}}{c_{i,L}}\right)_{eq.}$$

K_s: a szennyező komponens egyensúlyi megoszlási hányadosa a szilárd (S) és a víz (L) közegek között – [(Bq/kg)/(Bq/m^3)]
p_S: a szorpcióra képes szilárd „pórusfal” térfogategységre jutó tömege ≤ sűrűség [kg/m^3]
α: a szorpció hőmérsékletfüggő sebességi állandója (időegység alatt bekövetkező szorpció valószínűsége) [s^{-1}]

Szorpciós modellek (izotermák)

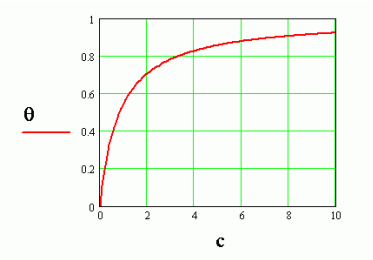


- Henry: lineáris modell $c_S = b \cdot c_L$

c: koncentráció
S: szilárd (solid)
L: folyadék (liquid)
b: egyensúlyi együttható
max.: maximális borítottság

- Langmuir:

$$\Theta = \frac{b \cdot c_L}{1 + b \cdot c_L}$$

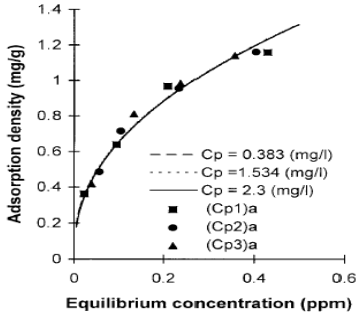


$$\Theta = \frac{(b \cdot c_L)^m}{(1 + b \cdot c_L)^m}$$

- Freundlich:

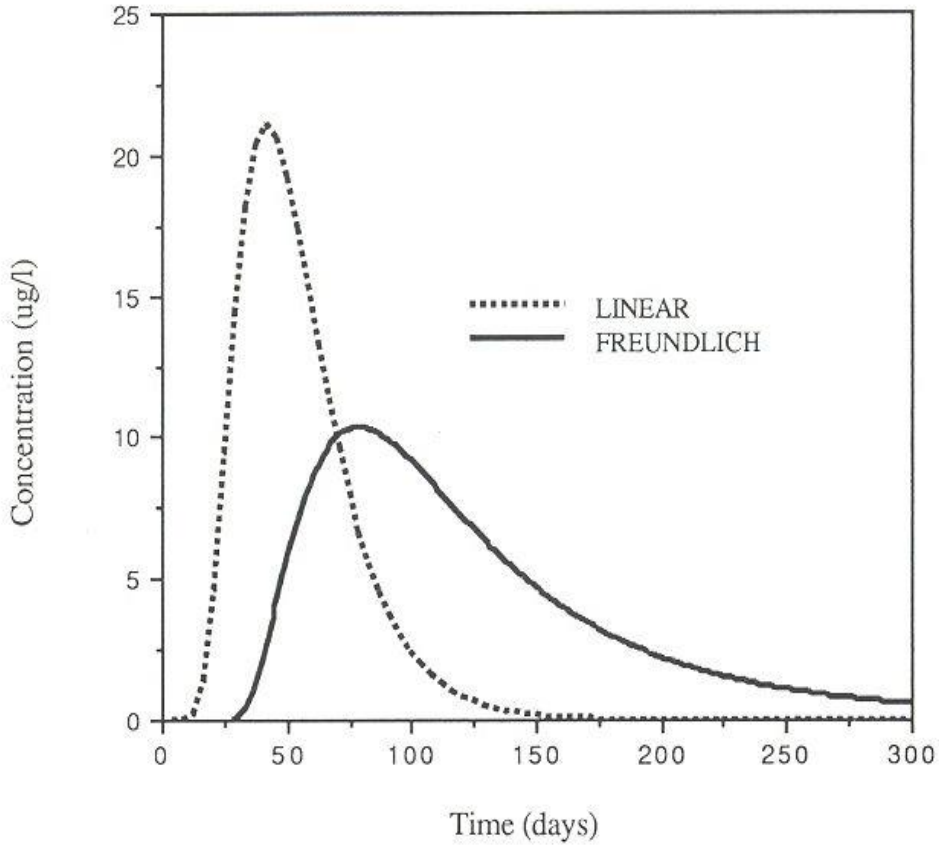
m≤1 (kötőhelyek heterogenitására jellemző)

$$\Theta = \frac{c_S}{c_{S,\max.}}$$



Θ: Relatív borítottság (≤1)

Terjedés talajvízben – 1. példa



Differenciál-egyenletrendszer megoldása az egyik kompartmentre

Két megoldási változat eredménye inaktív hordozóval együtt alkalmazott ^{90}Sr-ra egy adott (x,y,z) pozíciójú kompartmentben – eltérés csak az adszorpciós modellrészben volt. (Linear = Henry-modell)

Terjedés talajban – 2. példa – Erdei talaj ^{137}Cs-aktivitása Csernobil közelében

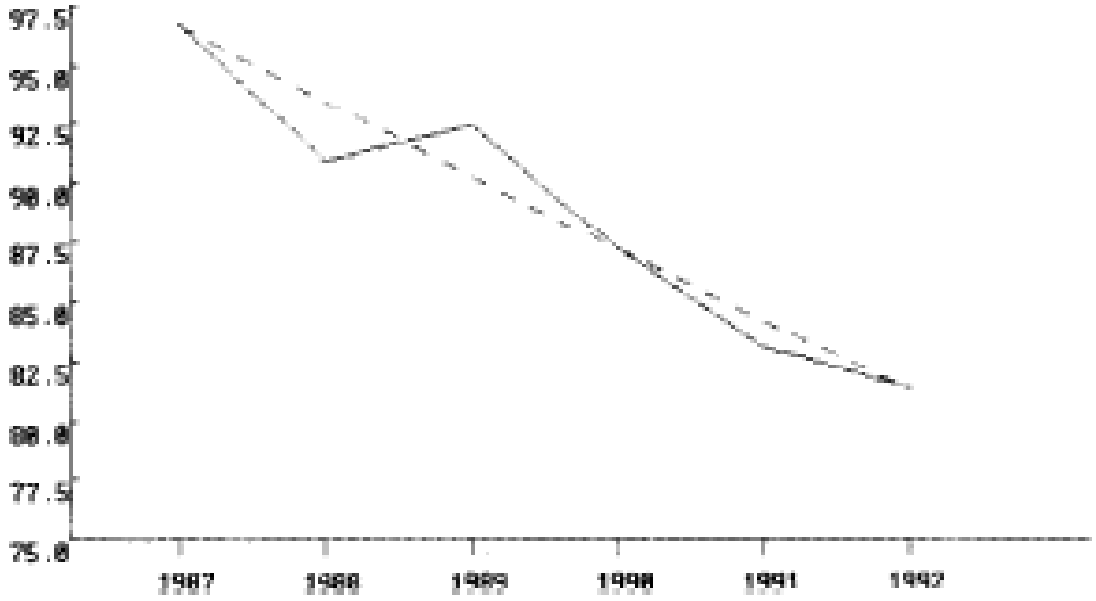


Fig. 3. Dynamics of ^{137}Cs content in the forest litter (A_0) percentage of total amount of ^{137}Cs in the soil. —— Field data; - - - computed results.

Csernobili eredetű ^{137}Cs migrációja erdei talajban
Modell: kompartmentek (felszíni hulladék = forest litter, talaj: „X” (mozgó) és „Y” (rögzült) típusú rétegek 1-1 cm vastagsággal, „szétosztó tartály” = gyökerek, gombafonalak) között az átvitelt 1. rendű differenciálegyenletek írják le
Forrás: S. Mamikhin, J. Environ. Radioactivity, **28** (1995) p. 161-170.

Terjedés heterogén mátrixban – átviteli tenyezők

A heterogenitás kezelésének egyik módszere a terjedés tér- és időbeli jellegének elkülönítése, hasonlóan az élő szervezetekben alkalmazott megoldáshoz.

Térbeli (x,y,z) koordináták „kijelölése”, majd a kiválasztott területen belül kompartmentek elkülönítése az időbeli változások leírására.

„Tisztán sztochasztikus” terjedési modell: sebességi együtthatók az átvitelre; egyesítik az advekciót, diszperziót, szorpciót és a radioaktív bomlást is.

Terjedés talajban – 2. példa

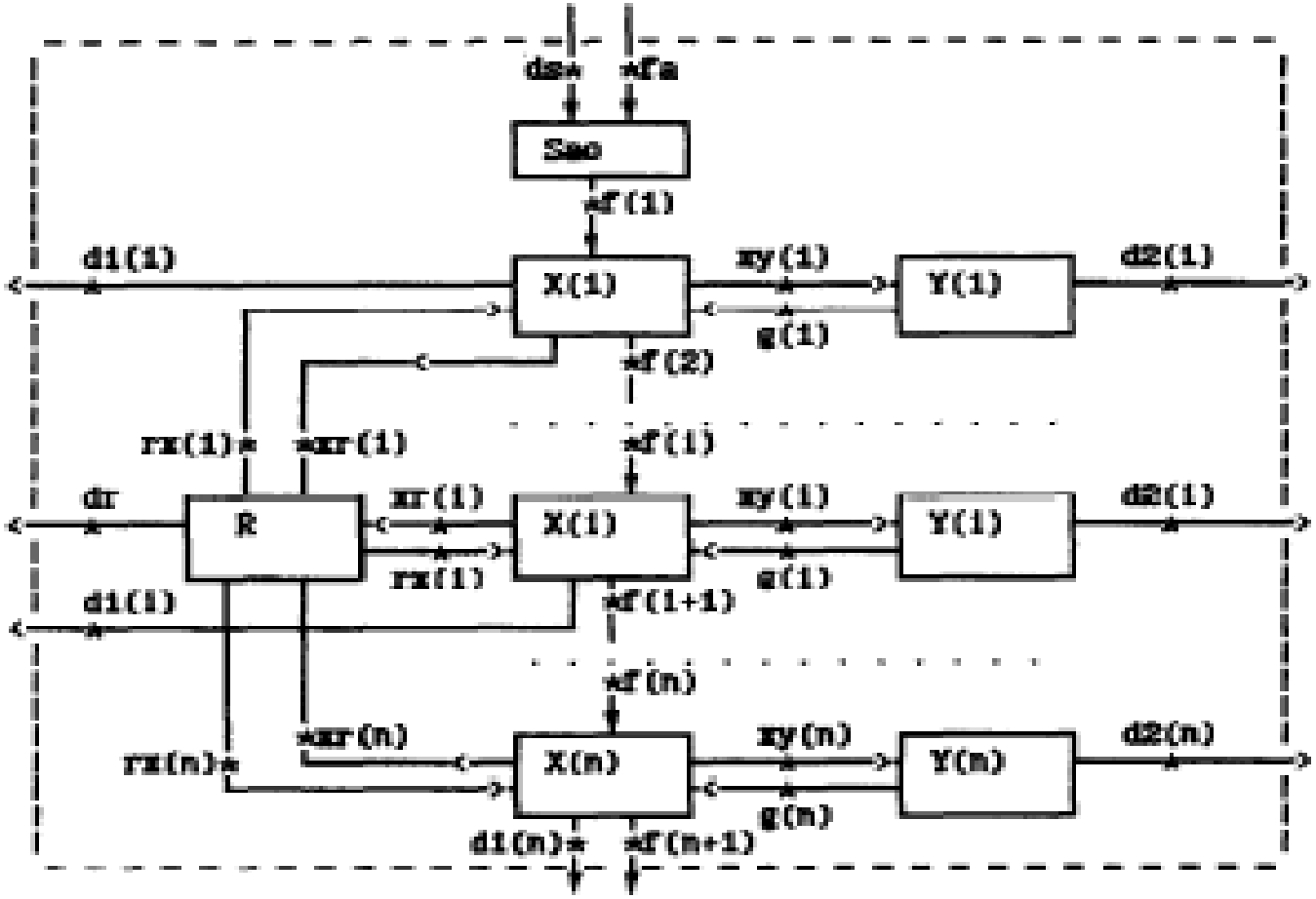


Fig. 1. Flow diagram of the vertical radionuclide migration in the soil.

X rétegek: mobilis komponens (talajvíz)
Y rétegek: rögzült komponens (talajszemcse)
R: gyökérzet
S: felszíni szerves anyagtörmelék
1. r. diff. egyenletek

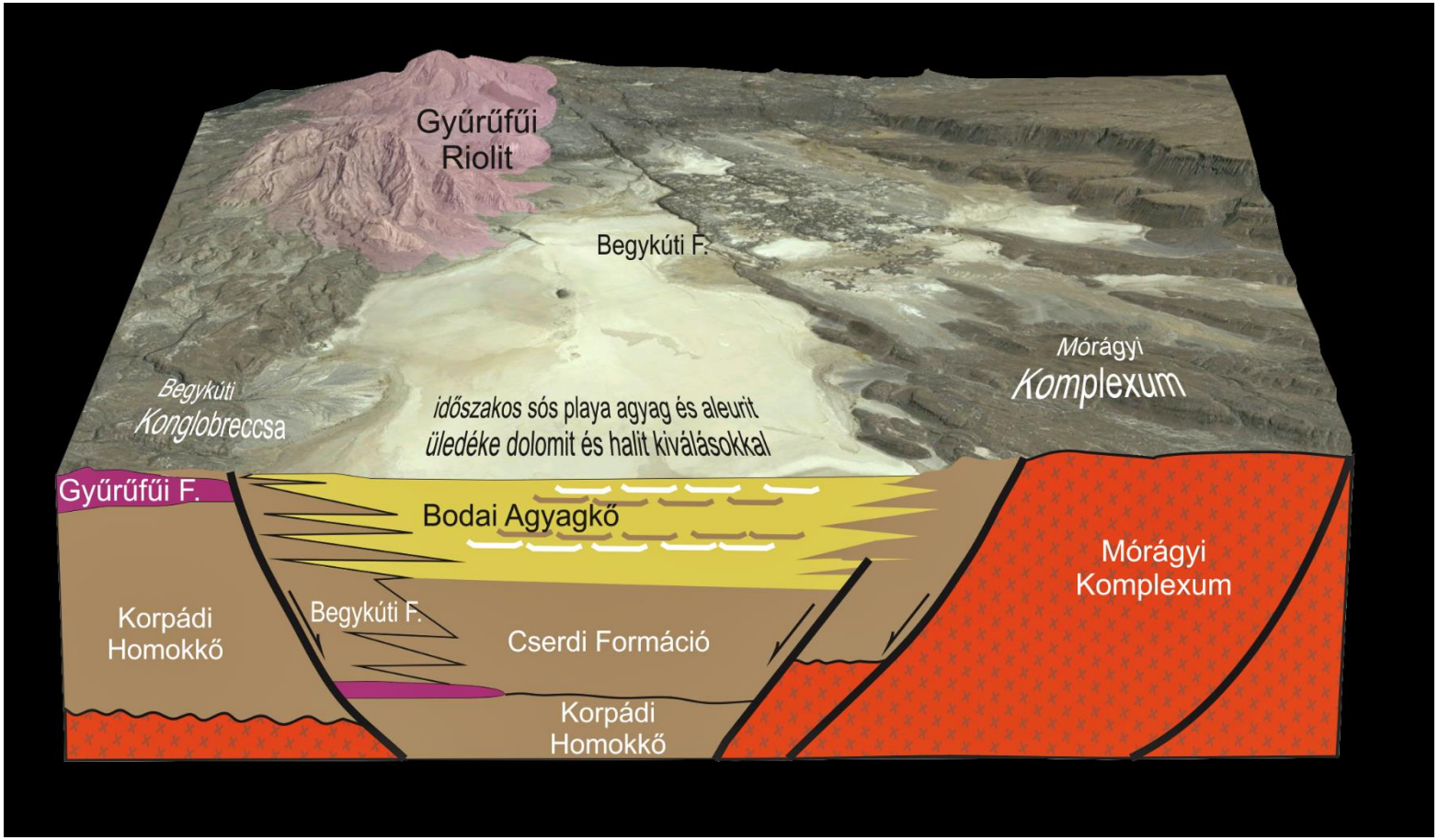
Terjedés talajban – 2. példa

^{137}Cs megoszlása erdei podzol talajban Csernobil után – mérési és modellszámítással kapott adatok

TABLE 2
Dynamics of ^{137}Cs Distribution in the Soddy Podzolic Sandy Soil Profile Percentage of Total Content

Layer (cm)	*Field data*			*Computing results*		
	1990	*1991*	*1992*	*1990*	*1991*	*1992*
A_0	87·26	83·1	81·4	87·19	84·22	81·35
0–1	5·0	8·5	12·04	8·44	10·39	12·28
1–2	2·08	3·5	4·09	2·62	3·23	3·82
2–3	0·84	1·8	1·35	0·84	1·04	1·23
3–4	0·57	1·3	0·52	0·30	0·38	0·45
4–5	0·47	0·8	0·26	0·14	0·17	0·20
5–6	0·4	—	0·08	0·09	0·11	0·13
6–7	0·41	0·4		0·07	0·08	0·10
7–8	0·3	—	0·09	0·06	0·08	0·09
8–9	0·23	0·3		0·05	0·06	0·08
9–10	0·15	—	0·14	0·05	0·06	0·07
10–11	0·15	0·3		0·04	0·05	0·06
11–12	0·07	—	—	0·04	0·05	0·06
12–13	—	—	—	0·03	0·03	0·04
13–14	—	—	—	0·02	0·03	0·03
14–15	—	—	—	0·01	0·02	0·02

Terjedés geológiai rendszerben – 3. példa: Bodai Agyagkő Formáció



Forrás: RHK kft.

Terjedés geológiai rendszerben – 3. példa

Izotópmigrációs vizsgálatok a Bodai Agyagkő Formáció kőzetmintáin

LÁZÁR Károly,[a,*] MÁTHÉ Zoltán,[b] MEGYERI János,[a] MELL Péter[a,c] és SZARVAS Tibor[a]

[a] *Izotópkutató Intézet, Konkoly Thege M. út 29 – 33, 1121, Budapest, Magyarország*

[b] *Mecsekérc Zrt, Esztergár L. út 19, 7633, Pécs, Magyarország*

[c] *Szakértői Szolgáltató Intézet, Nemzetbiztonsági Hivatal, Budapest 62 Pf. 710/3, 1399, Magyarország*

A közlemény a Magyar Kémiai Folyóirat 2009-es, 115. évfolyamában jelent meg.

BAF: a nagyaktivitású radioaktív hulladék elhelyezésére kiválasztott geológiai formáció
A vizsgálatok célja: „helyben érvényes” diffúziós együtthatók meghatározása
Agyagásványok:
- 20 – 40 % agyagtartalom ($Al_2O_3 \times 2SiO_2 \times 2H_2O$, elsősorban kationcserélő képesség)
- csak 2 – 3 % porozitás (kétféle: „teljes” és „hozzáférhető” = átjárható)

Terjedés geológiai rendszerben – BAF (3. példa)

$$\frac{v_i}{v_w} = \frac{1}{1 + K_s \rho \left(\frac{1-n}{n}\right)}$$

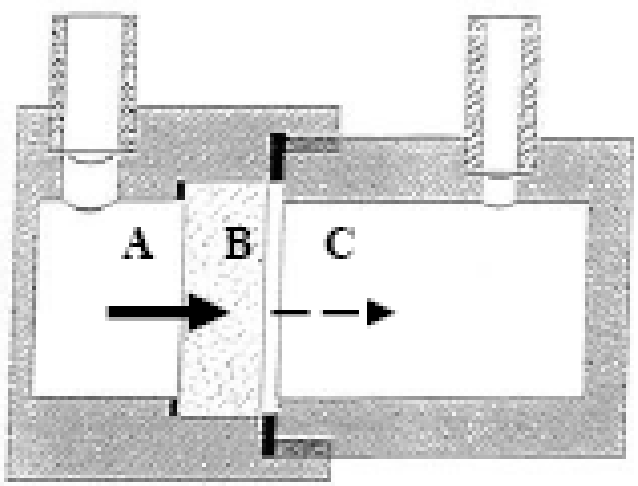
Relatív „lineáris” áramlási sebesség – radioizotópokra (i) és vízre (w).
A hányados <1 szorpció/ioncsere miatt.
K_s: megoszlási hányados
ρ: sűrűség
Lineáris áramlási sebesség = az advekciós- és Darcy-sebesség azonos irányú vetületeinek összege

A radioizotóp lineáris áramlási sebessége [m/s]:
Mérhető koncentráció megjelenése adott helyen, az idő függvényében
Dinamikus folyamatot jellemző paraméter; a koncentráció folyamatosan változik

Terjedés geológiai rendszerekben – BAF kőzetminták vizsgálata

$$\frac{c(t)}{c_0} = \frac{A}{VL} \cdot D_{eff} \cdot t - \frac{\alpha AL}{6V}$$

A: kőzetminta migrációs keresztmetszete
L: minta vastagsága
V: cellatérfogat
α: kőzetkapacitás-tényező (a szorpció megoszlási hányadosával arányos)
D_{eff}: effektív diffúziós együttható



<u>Áttöréses vizsgálatok</u>
A: c_0 koncentrációjú radioaktív oldat
B: Kőzetmag
C: Eredetileg inaktív oldat
Advekciós gradiens nincs (Δp=0), tisztán diffúziós áramlás és szorpció/deszorpció
Negatív tag: tartós megkötés - retenció

A fenti <u>félempirikus</u> egyenlet csak addig érvényes, amíg $c(t) << c_0$ (lineáris közelítés, a telítődéstől távol, a szorpció kezdeti szakaszában = Henry-modell)

Terjedés geológiai rendszerekben – BAF kőzetminták vizsgálata

Fúrómagok átmérője: 47 - 64 mm, szeletek vastagsága: 8 mm

Mintavétel helye: 540 és 1040 m mélyről

BAF: 260 millió éves kőzet

Kőzetvíz inaktív sótartalma: $NaHCO_3$, Na_2SO_4, pH=8

Nyomjelzés: $^{99}TcO_4^-$, $H^{14}CO_3^-$, HTO (anionok és víz!)

<u>Eredmények</u>:

$D_{eff}(TcO^-_4)$: 4.10^{-12} m^2/s, $\alpha \approx 0$

D_{eff} (HCO^-_3): 1.10^{-12} m^2/s, α: 1,1 (pH=12-nél α sokkal nagyobb)

D_{eff} (HTO): $1,5.10^{-11}$ m^2/s

t=100000 évre x≈1,8 m az anionokra

x: <u>diffúziós hossz</u>

$t_{diff:}$ <u>diffúziós időtartam</u>

$$x \approx \sqrt{Dt} \qquad t_{diff} \approx \frac{x^2}{D}$$

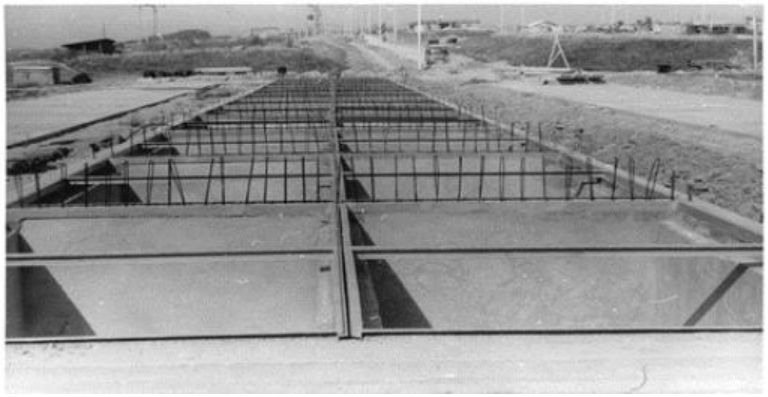
(közelítő összefüggések a „tiszta” diffúziós helyzetekre)

Terjedés geológiai rendszerben – 4. példa

RADIOAKTÍV HULLADÉKOKBAN ELŐFORDULÓ HOSSZÚ FELEZÉSI IDEJŰ NUKLIDOK FELSZÍN ALATTI MIGRÁCIÓJÁNAK ÉS KÖRNYEZETI HATÁSAINAK MEGHATÁROZÁSA (Püspökszilágy)

Doktori értekezés, készítette Pollner László (2001.)

Radioaktív Hulladékokat Feldolgozó Telep (RHFT) - Püspökszilágy



1976 – vasbetonmedencék az agyaglencse felszínébe ágyazva

2000 – két lefedett és két még fedetlen, de gyakorlatilag megtelt medence

Terjedés geológiai rendszerben (Püspökszilágy) - egy 1999/2001-es PhD dolgozat céljai

- Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére
- A Némedi- és Szilágyi-patak vizének közvetlen fogyasztásából származó belső sugárterhelés kiszámítása
- Paraméterek bizonytalanságának becslése
- A vizsgálat szerint legérzékenyebb diszperzió vizsgálata
- A radioaktív hulladék elhelyezéséből származó összes lekötött effektív dózis becslése

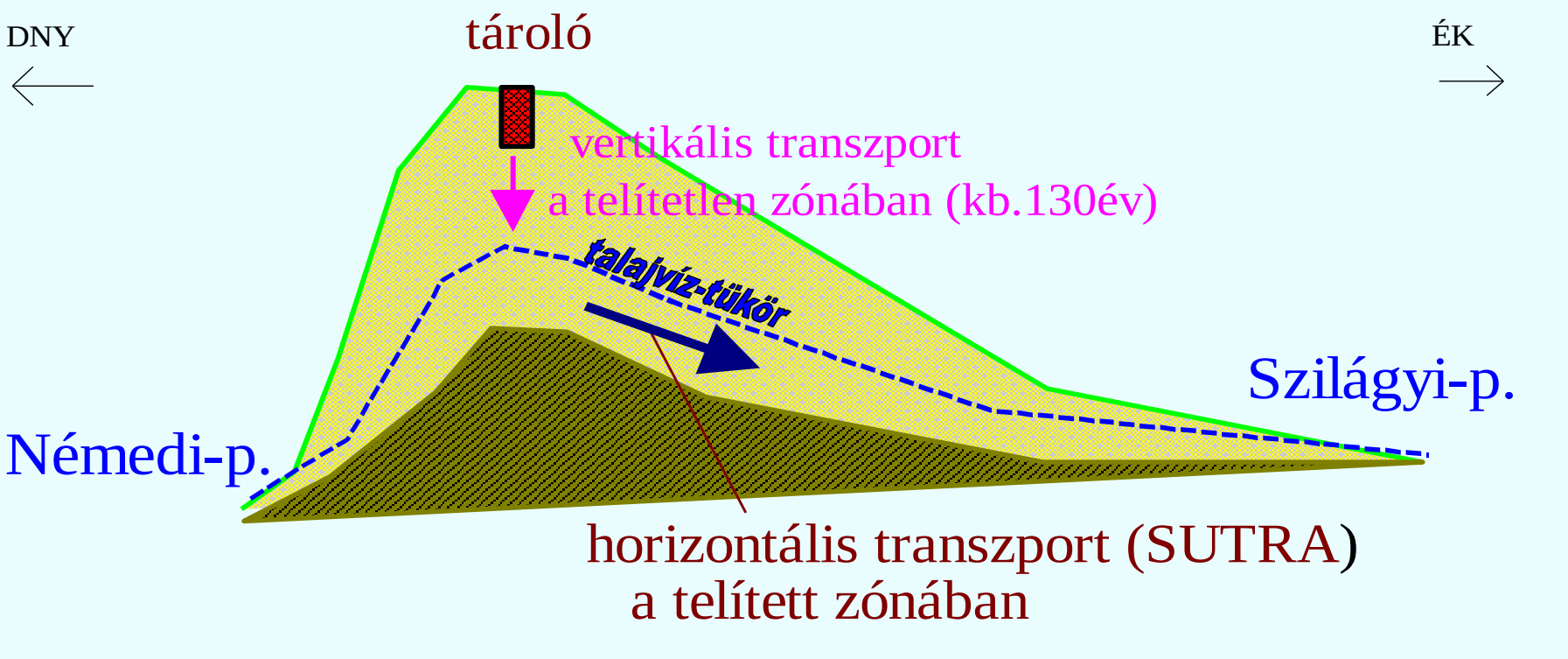
Diszperzivitás értelmezése

- A homogén rendszerben mérhető „molekuláris” diffúziós együttható (D_m) és a heterogén rendszerben fennálló „sebességszóródás” miatt szétterülés (kinematikai diszperzió, D_k) összegzése
- α = diszperzivitás [m] – egységnyi cserélődési hányadra [s^{-1}] vonatkozó keresztirányú szétterülési sebesség [m/s]
- v = a talajvíz áramlási (advekciós) sebessége [m/s], a környezeti potenciál aktuális gradiensének irányában → „talajvíztükör” lejtései
- n = porozitás [-]

$$D = D_m + D_k \quad [m^2/s]$$

$$D_k = \frac{\alpha \cdot v}{n}$$

Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére



- A tárolótól a talajvíztükörig a telítetlen zónában nagyságrendi becslés
- A telített zónában 2D véges elemes modellezés a SUTRA programmal

Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére

A telített zónában 2D véges elemes modellezés a SUTRA programmal

Megoldandó egyenletek:

$$-\mathrm{div}(K\ \mathrm{grad}\ h)=Q/\rho$$

$$\frac{\partial(n\rho C)}{\partial t} = -f - div(n\rho \underline{v} C) + div(n\rho \underline{D} \cdot gradC) - \lambda n\rho C + QC^*$$

$$\frac{\partial((1-n)\rho_s C_s)}{\partial t} = +f - (1-n)\rho_s C_s \lambda$$

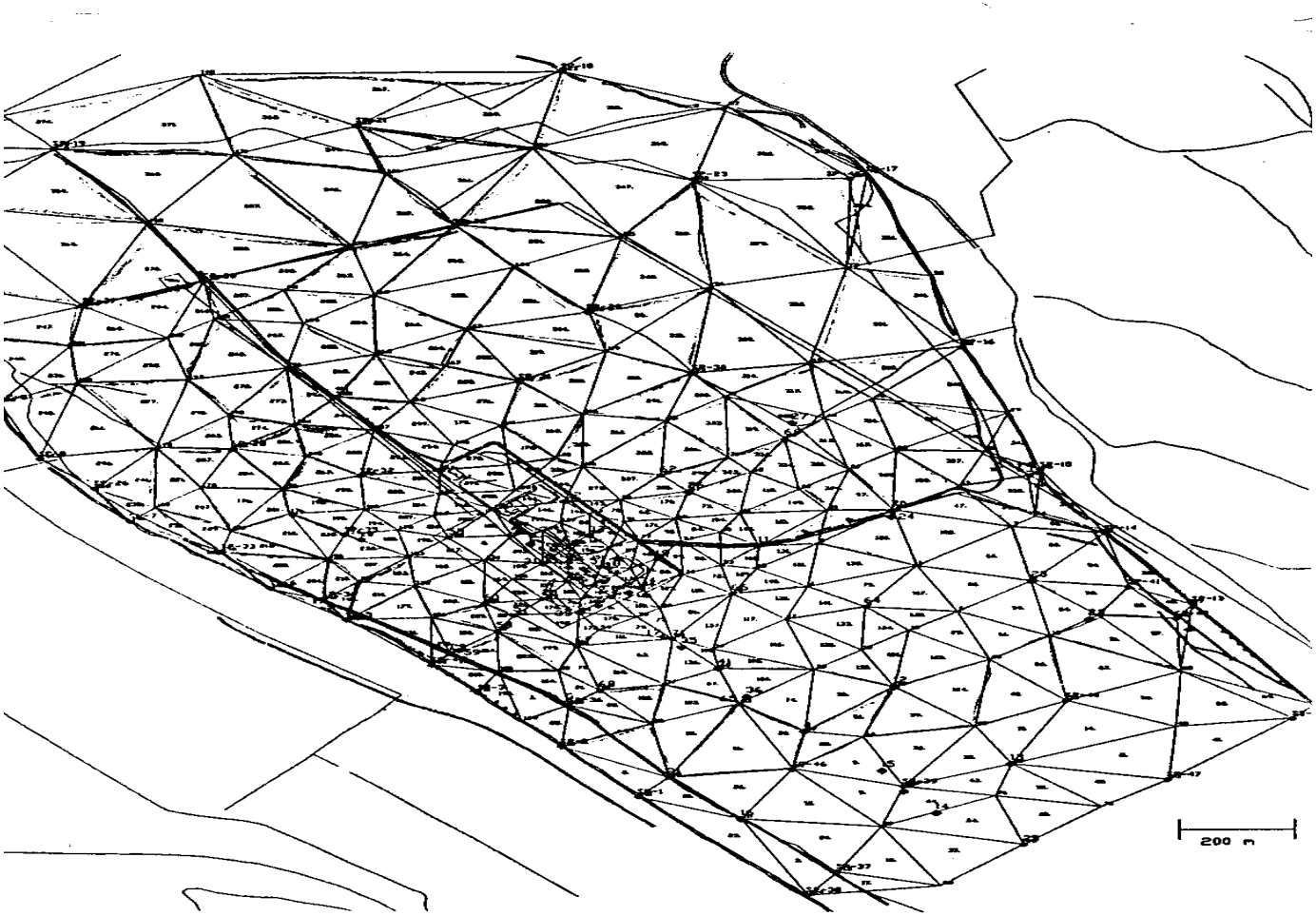
$$f = (1-n)\rho_s \rho K_d \frac{\partial C}{\partial t}$$

ahol

t [s]	idő
ρ [kg/m^3]	folyadék (talajvíz) sűrűsége
ρ_s [kg/m^3]	szilárd fázis (kőzet mátrix) sűrűsége
n [-]	porozitás
S_w [-]	víztelítettség
$\underline{v}$ [m/s]	talajvíz áramlási sebessége
Q [kg/m^{3}s]	„forrás” (bejutó szennyezett folyadék tömegáram)
C [Bq/kg]	talajvíz koncentráció (oldott anyag mennyiség (Bq/folyadéktömeg)
C* [Bq/kg]	forrás koncentráció (oldott anyag mennyiség (Bq/folyadéktömeg)
C_s [Bq/kg]	koncentráció a szilárd fázisban (kőzetmátrix) (Bq/tömeg)
D [m^2/s]	diffúziós/diszperziós együttható tenzor
f [Bq/m^{3}s]	térfogati adszorpciós forrás/nyelő (adszorbeált anyagmennyiség (Bq) egységnyi időre és térfogatra)

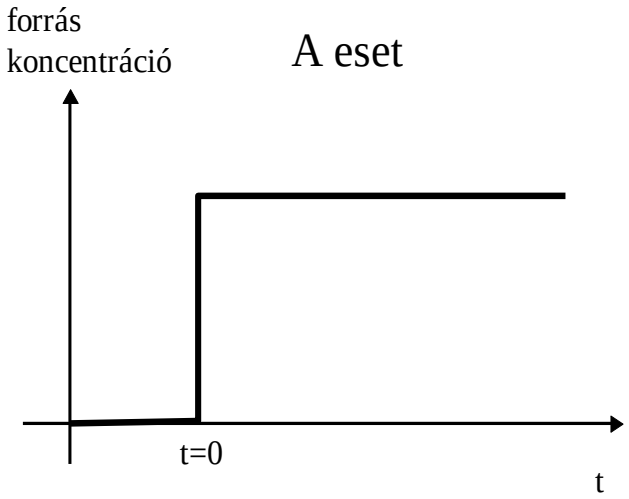
Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére

Numerikus háló, amelyen a terjedési egyenleteket meg kellett oldani

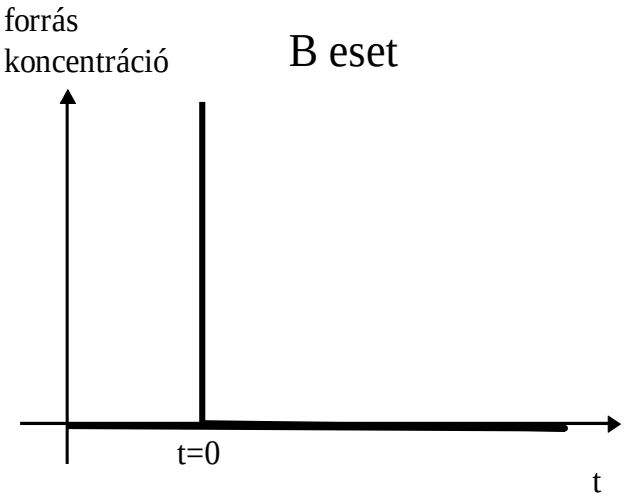


Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére

A forrás időbeli megjelenése



Áttörés



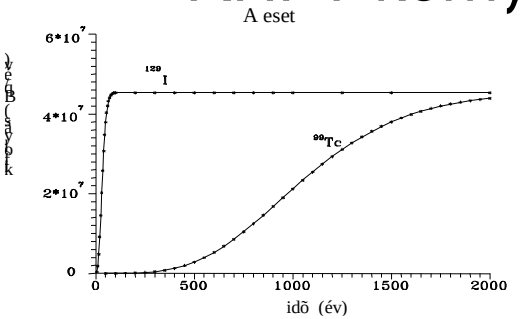
Pillanatszerű kikerülés („baleset”)

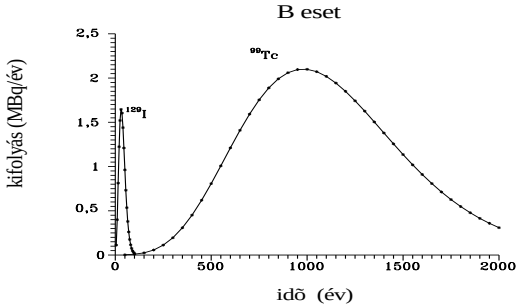
Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére

A modellezés fontosabb bemenő paraméterei

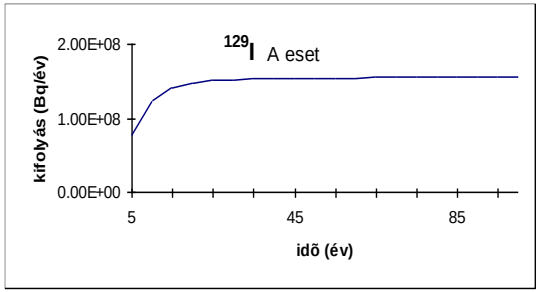
	$^{129}I^-$	$^{99}TcO_4^-$	$^{226}Ra^{2+}$
bomlási állandó (λ; 1/s)	$1{,}3.10^{-15}$	$1{,}0.10^{-13}$	$1{,}3.10^{-11}$
szorpciós modell	nincs	lineáris	lineáris
lineáris szorpciós együttható (K_d ; m^3/kg)	-	0,0005	0,02
időlépés (év)	5	50	500
forrás koncentráció (A eset) (C*; Bq/kg)	1000	1000	1000
kezdeti talajvízbeli koncentráció a forrás helyén (B eset) (C(t=0); Bq/kg)	1000	1000	1000
háttér koncentráció (0 szint) (Bq/kg)	10^{-4}	10^{-4}	10^{-4}
diszperzivitás (α)	10 m	10 m	10 m
molekuláris diffúziós együttható (D_m; m^2/s)	10^{-11}	10^{-12}	10^{-12}
porozitás (n)	0,03	0,03	0,03
vízsűrűség	1000 kg/m^3	1000 kg/m^3	1000 kg/m^3
szilárd fázis (nettó talaj) sűrűség (ρ_s)	2000 kg/m^3	2000 kg/m^3	2000 kg/m^3
számított retardációs faktor ($R=1+(1-n)\rho_s K_d /n$)	1	33,3	1292

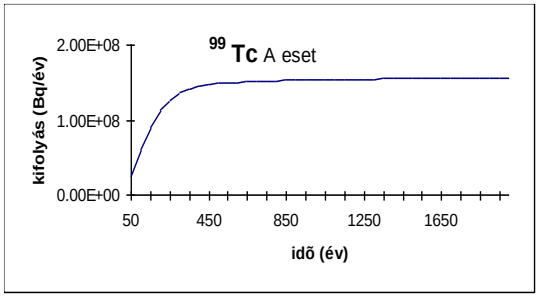
Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére - Eredmények





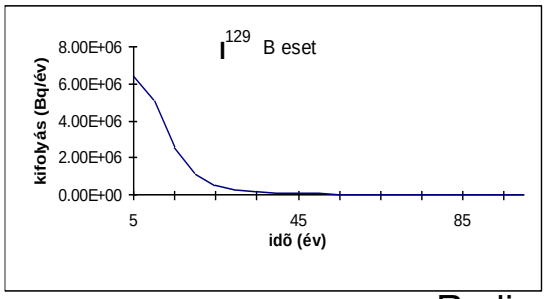
Kifolyó szennyezés mennyisége a Szilágyi-patakba ^{99}Tc és ^{129}I A és B esetére (1kBq/dm^3 kezdeti forrás koncentrációhoz képest)

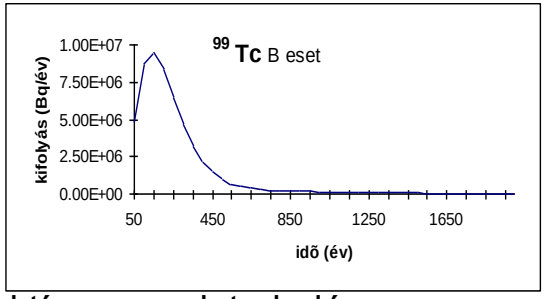




Kifolyási görbék a patakokba: ^{129}I és ^{99}Tc

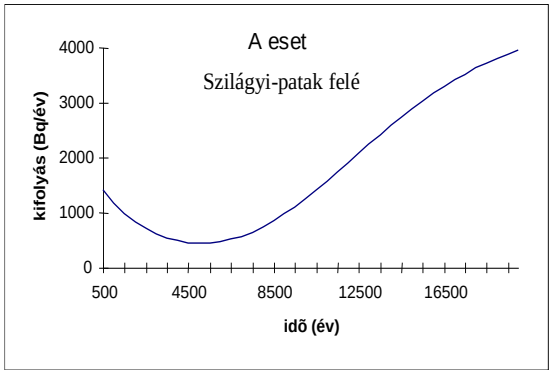
Kifolyó szennyezés mennyisége a Némedi-patakba ^{99}Tc és ^{129}I A esetére (1kBq/dm^3 kezdeti forrás koncentrációhoz képest)

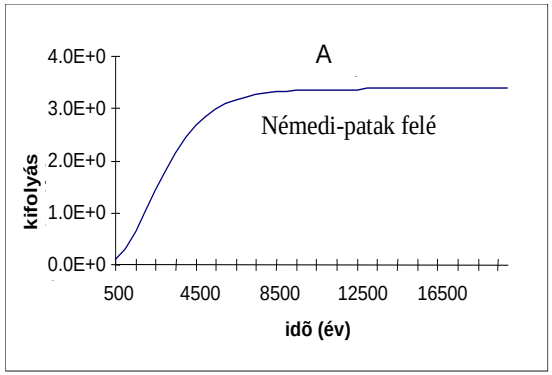




Kifolyó szennyezés mennyisége a Némedi-patakba ^{99}Tc és ^{129}I B esetére (1kBq/dm^3 kezdeti forrás koncentrációhoz képest)

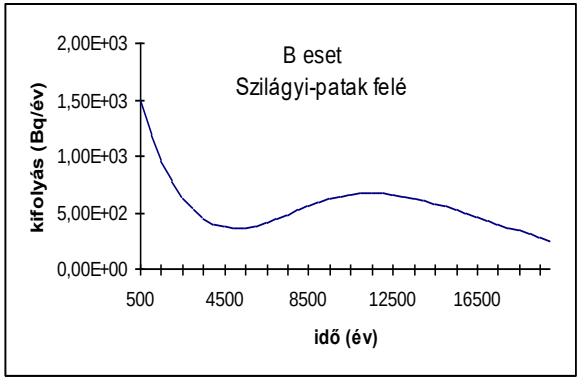
Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére - Eredmények

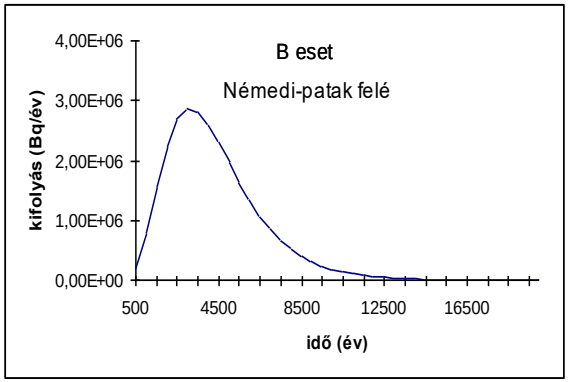




Kifolyó szennyezés mennyisége a patakokba ^{226}Ra A esetére (1kBq/dm^3 kezdeti forrás koncentrációhoz képest)

Kifolyási görbék a patakokba: ^{226}Ra





Kifolyó szennyezés mennyisége a patakokba ^{226}Ra B esetére (1kBq/dm^3 kezdeti forrás koncentrációhoz képest)

Kiegészítő információk

- A dolgozat készítésének idején hatályban volt MSZ 62/1-1989 szabvány szerint a származtatott aktivitáskoncentrációt (SZAK) a dóziskorlátból (DL) és az éves felvételi korlátból (ÉFEK) határozták meg.

$$\text{É}FEK_{i,j} = \frac{DL}{e(g)_{i,j}}$$

$$SZAK = \frac{\text{É}FEK}{Q}$$

i: radionuklid
j: beviteli útvonal (lenyelés vagy belégzés)
Q: éves fogyasztás (levegőből, vízből, élelmiszerből)
$e(g)_{i,j}$: belső dózistényező (dóziskonverziós tényező, DCF)

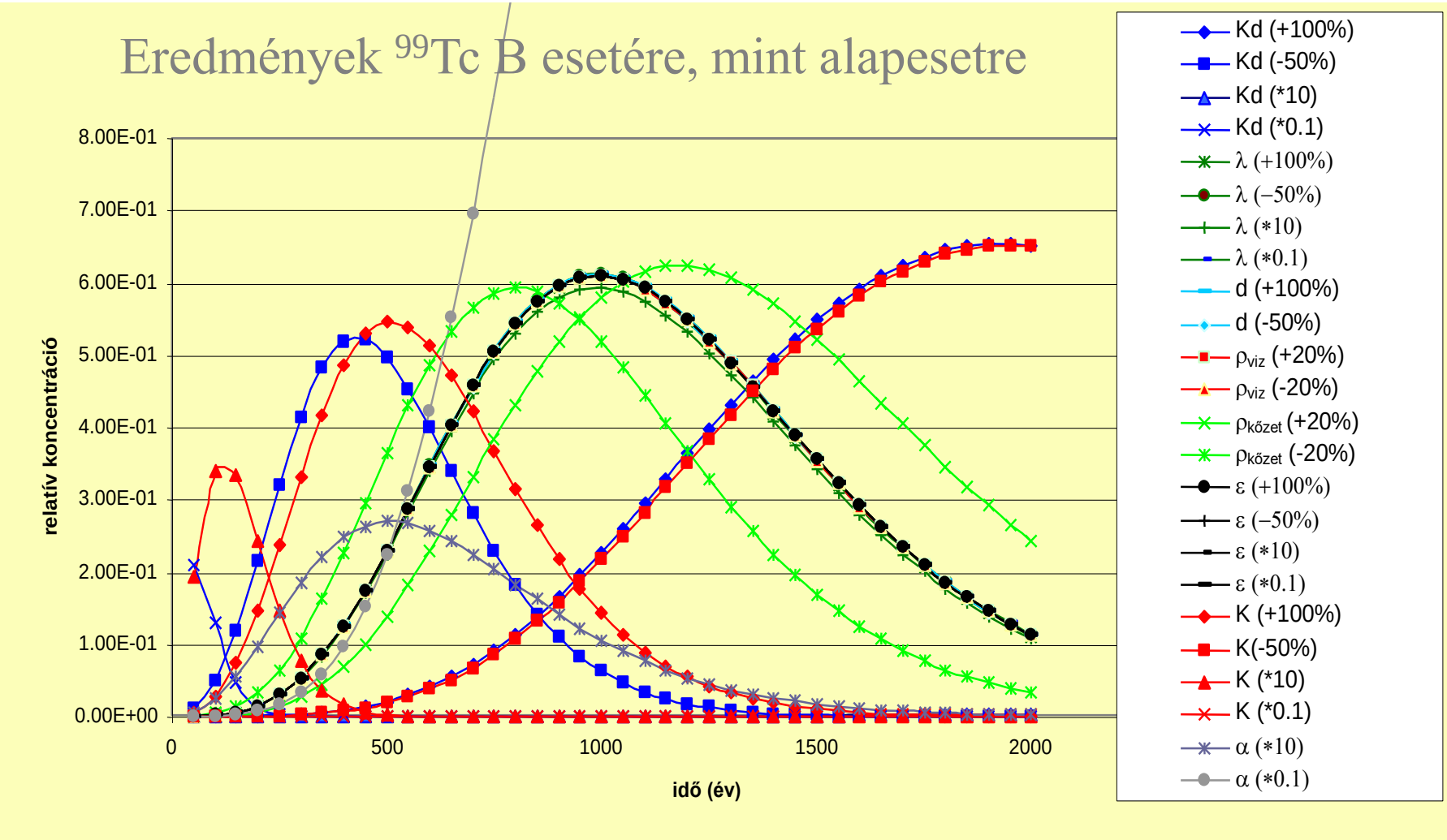
Felszínalatti transzport becslése a püspökszilágyi RHFT környezetére - patakvíz közvetlen emberi fogyasztásából származó belső sugárterhelés

koncentráció a patakban			
izotóp	^{129}I	^{99}Tc	^{226}Ra
konzervatív eset (Bq/dm^3)	6,5E-07	78	0,064
realisztikus eset (Bq/dm^3)	2,7E-08	3,5	0,0034
SZAK (Bq/dm^3)	125	17500	49
dózisterhelés (µSv/év)			
konzervatív eset	1,04E-04	89	26
realisztikus eset	4,35E-06	3,9	1, 4

Felszínalatti transzport becslése - Paraméterbizonytalanság és diszperzió

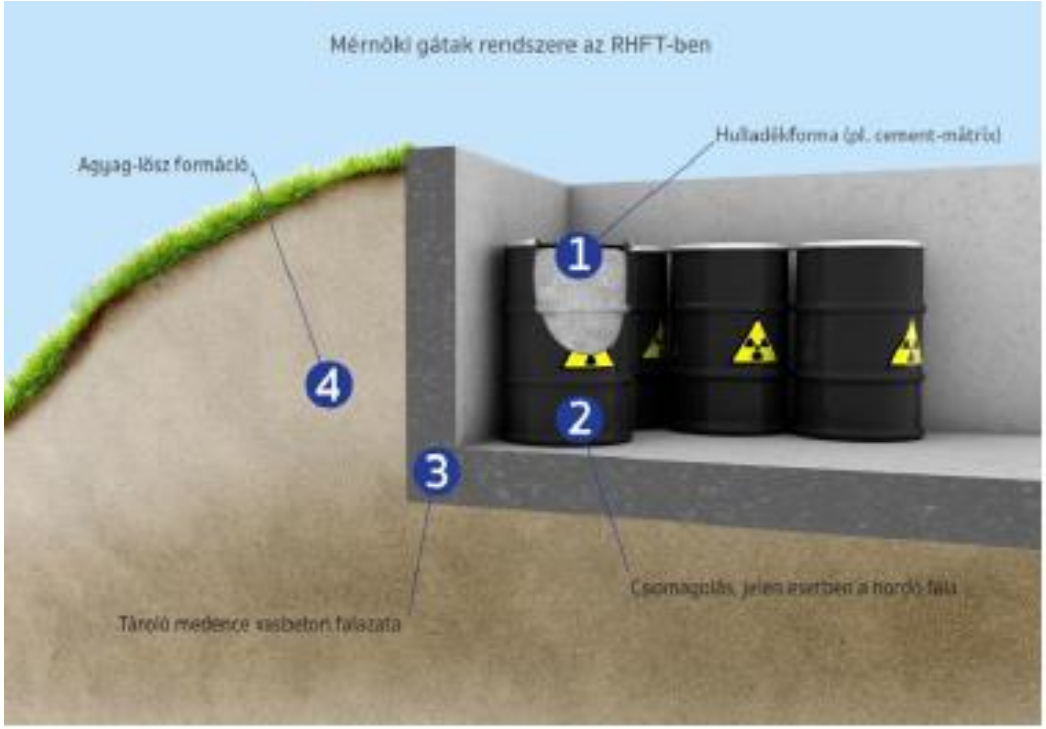
- A bizonytalan bemenő paraméterek Monte Carlo analízise és a transzport részecskekövetéses modellezése összekapcsolható volt egy hibrid modellben.
- Megvizsgáltuk e hibrid modell lehetséges előnyeit és hátrányait.
- A hibrid modellt megoldó számítógépes programmal igazolható volt, hogy a bizonytalan bemenő paraméterek hatása a rendszerben tapasztalható transzport átlagos (várható) viselkedésére analóg az ugyanazon rendszerben átlagos bemenő paraméterek melletti, de megnövelt diszperziós állandójú transzporttal.

Felszínalatti transzport becslése - Érzékenységvizsgálat



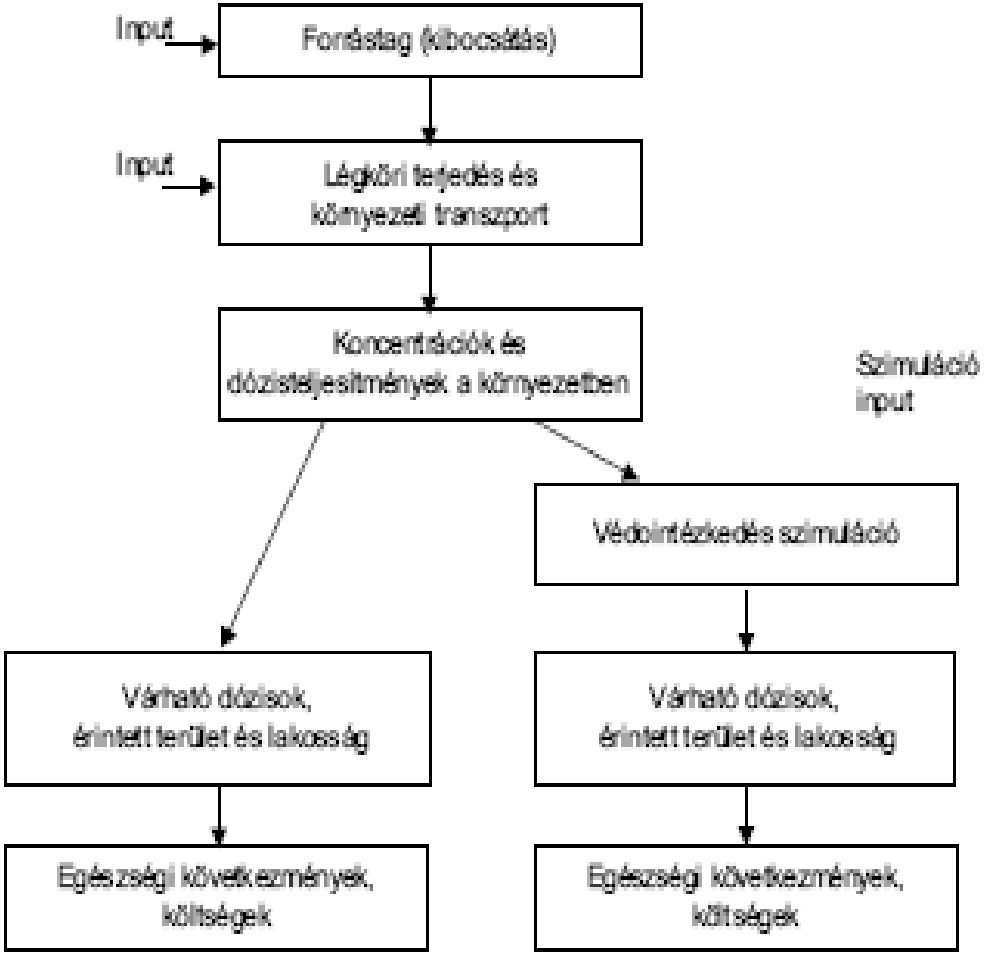
A legérzékenyebb paraméter a **diszperzivitás!**

RHFT Püspökszilágy



Felülvizsgálat: az elhelyezés változatlan, a mérnöki gátak bővítendők, a tárolt hulladék egy része felszabadítandó, a maradék kisebb térfogatban helyezhető el. (2006 – 2009: „4 medencés” projekt)

5. Összetett számítógépes programok a környezetben fellépő dózis számítására és a következmények elemzésére – radiológiai döntéstámogató rendszer általános szerkezete



F2.1. ábra: egy általános következményelemzési modell

Összetett környezeti modellezés

Légkör + Folyó/Tó/Tenger + Talaj/talajvíz + Élővilág (Emberhez kötődő ökorendszer) → **<u>Dózis</u>**

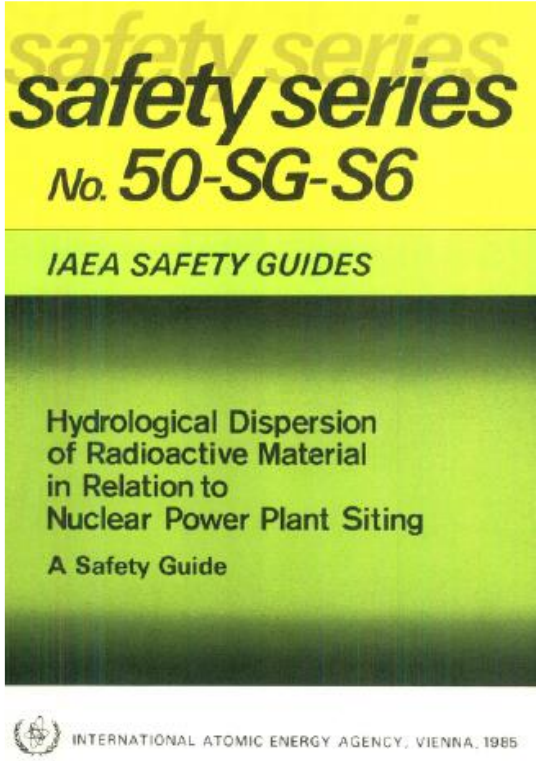
Korábbi, IAEA-támogatással készült környezeti transzport összehasonlító vizsgálatok: BIOMOVS (Biospheric Model Validation Study), VAMP (Validation of Environmental Model Predictions)

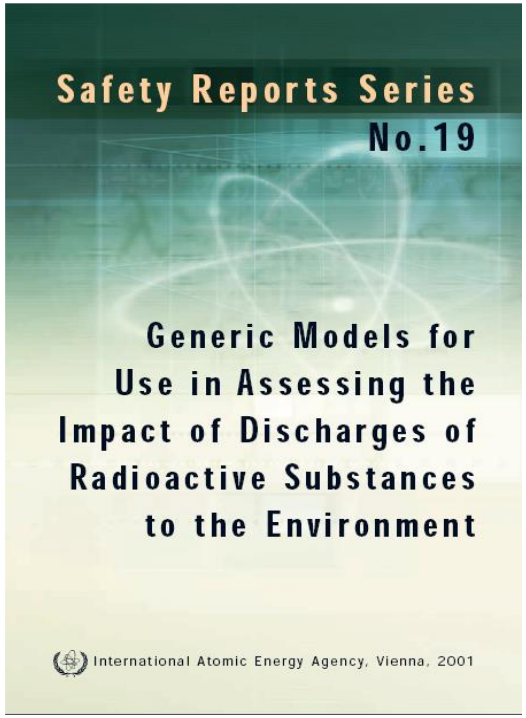
IAEA – BIOMASS (2003): Irányított kutatási program „Biosphere Modelling and Assessment Methods” (RUVFRU – magyar modell ennek keretében)

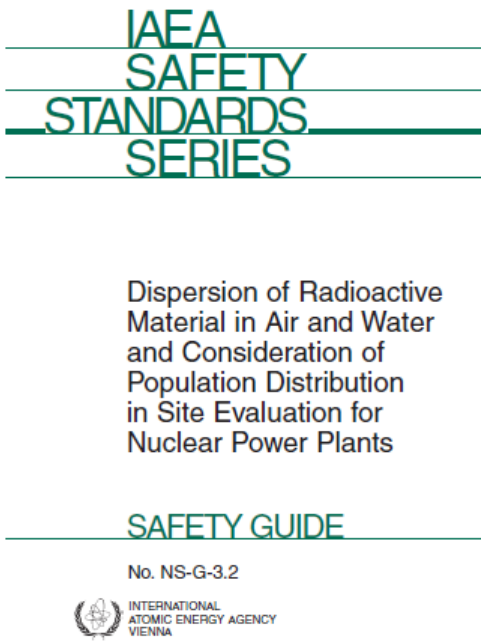
Újabb IAEA-projektek: EMRAS és EMRAS-II. (Environmental Modelling for Radiation Safety)

Összetett környezeti terjedési modellezési módszerek

Régebbi és újabb IAEA kompilációk



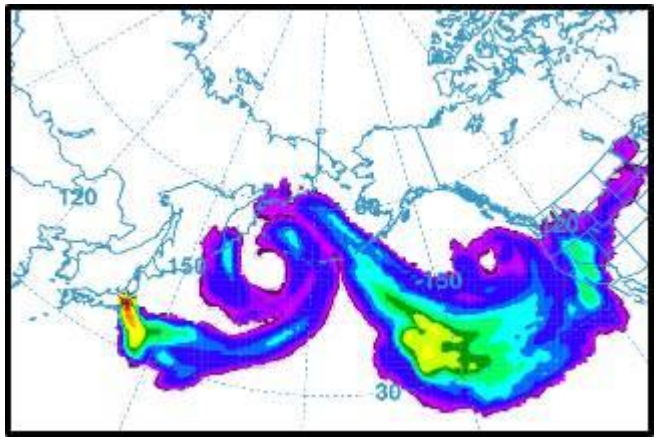




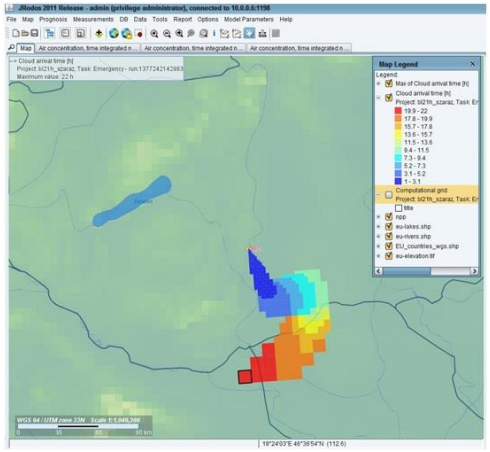
Összetett terjedés- és dózisszámító programok

Nem teljeskörű felsorolás!

- COSYMA
- SINAC
- ERICA
- HYSPLIT
- INTERRAS-RASCAL
- MACCS
- OSCAAR
- PC-CREAM
- RODOS



Forrás: HYSPLIT user's guide https://www.arl.noaa.gov/documents/reports/hysplit_user_guide.pdf



Forrás: OAH CERTA - JRODOS

BIOMASS – Hanford összehasonlító modellvizsgálatok 2003.

1963 szeptember 2-5. között véletlen kibocsátás miatt összesen 2,3 TBq ^{131}I (eredeti kémiai forma: $I^{\bullet}$ és I_2) jutott a levegőbe egy 60 m magas kéményből, az 1450 km^2 területű Hanford (USA) katonai nukleáris központban működő kémiai elválasztó üzemből. Pihentetés nélküli reaktor-fűtőelemek anyagát töltötték a PUREX elválasztó technológia feloldó egységébe. A műveleteket a kibocsátás észlelésekor leállították. Megpróbálkoztak a még ki nem bocsátott ^{131}I visszatartásával. Mintákat vettek és elemeztek a kémény kibocsátásából, valamint megnövelték a környezeti ellenőrzés mintavételi számát és gyakoriságát. A telep meteorológiai tornya rutinszerűen szolgáltatott szélsebesség- és hőmérséklet adatokat. Ilyen adatokat szereztek néhány 100 km-es körzetben lévő más meteorológiai állomásokról is, a terjedés modellezéséhez.

A vizsgálati területen és időben nem volt csapadék. Nem alkalmaztak védelmi intézkedéseket a kibocsátást követően. Az eseményt megelőző hónapokban nem volt légköri atomfegyver-kísérlet. A telep rendszeres ^{131}I-kibocsátása az esemény előtt és után 4 GBq/hónapnál nem volt több.

BIOMASS – Hanford összehasonlító modellvizsgálatok 2003.

TABLE I. SUMMARY OF PARTICIPANTS AND ENDPOINTS MODELLED

Participant	Napier	Filistovic	Homma	Krajewski	Kryshev	Kanyár/ Nényei	Tveten
Country	USA	Lithuania	Japan	Poland	Russia	Hungary	Norway
Deposition	x	x	x	x	x	x	x
Vegetation concentrations	x	x	x	x	x	x	x
Milk concentrations	x	x	x	x	x	x	
Daily averages at dairies					x	x	
Human intake			x	x	x	x	
Thyroid burdens			x	x	x	x	
Dose Estimates:							
External (cloud)	x	x	x	x	x	x	
External (ground)	x	x	x	x	x	x	
Inhalation	x	x	x	x	x	x	
Ingestion	x	x	x	x	x	x	
Total	x	x	x	x	x	x	
Dispersion contours	x	x	x			(x)[a]	

[a] Dispersion contours were developed, but not submitted.

BIOMASS – Hanford összehasonlító modellvizsgálatok 2003.

TABLE III. SUMMARY OF VALUES USED FOR SELECTED MODEL PARAMETERS

Parameter	Napier (HEDR)	Filistovic	Homma
iodine speciation (%)			
reactive gas (I_2)	40–60	40	40
particulate	5–45	25	25
organic	remainder[b]	35	35
dry deposition velocity ($m \cdot s^{-1}$)			
all (weighted average)			0.0043
reactive gas (I_2)	0.002–0.07	0.01	0.01
particulate	0.0015–0.0095	0.001	0.001
organic		0.0005	0.0001
pasture yield ($kg\ m^{-2}$)	0.3 (dry)	0.519 (wet)	–[c]
biomass growth rate ($kg \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$)	by crop type	–[c]	–[c]
weathering rate constant (d^{-1})	0.0495	0.074	0.0495
interception fraction (pasture)	function of biomass	–[c]	–[c]
absorption coefficient or mass interception factor (pasture; $m^2\ kg^{-1}$)	1.0–4.0	1.0	2.0
milk transfer coefficient for ^{131}I ($d\ L^{-1}$)	0.0092	0.00117	0.01 (model equivalent)
transfer in cow (d^{-1})	–[c]	–[c]	–[c]
GI tract–to–blood			
blood–to–milk			
milk production ($L\ d^{-1}$)	–[c]	–[c]	–[c]
fraction of daily intake of ^{131}I secreted per liter of milk (L^{-1})	–[c]	–[c]	$0.0091\ e^{(0.0210)} * [1-e^{(-0.2926)}]$

BIOMASS – Hanford összehasonlító modellvizsgálatok 2003.

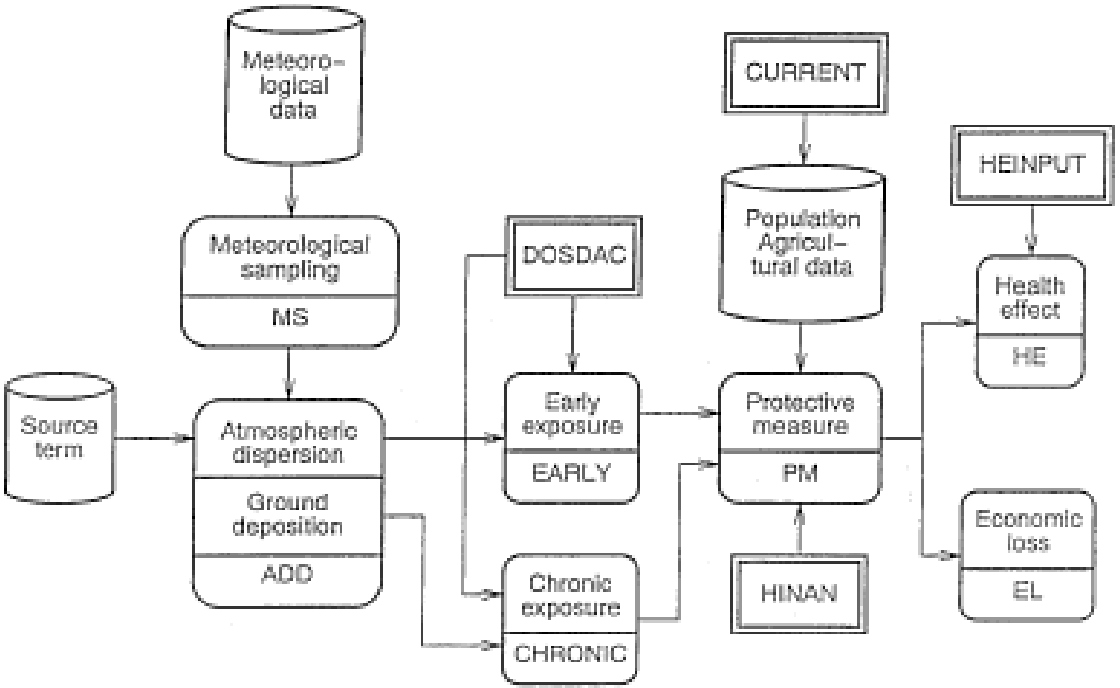


FIG. 42. Schematic representation of the OSCAAR code system.

OSCAAR = Off-Site Consequence Analysis code for Atmospheric Releases in reactor accidents (JAERI, Japan – T. Homma et al.)

BIOMASS – Hanford összehasonlító modellvizsgálatok 2003.

TAM DYNAMIC program (Veszprémi Egyetem, Kanyár B., Nényei Á.)

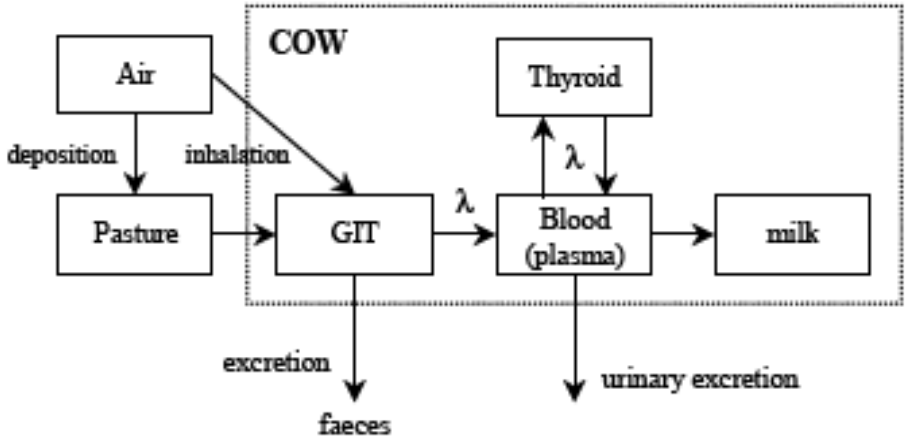


FIG. 51. Compartmental system used to modelling the I-131 kinetics in the pasture-cow-milk pathway.

BIOMASS – Hanford összehasonlító modellvizsgálatok 2003. Számított dózisok a „célterületeken” a TAM DYNAMIC programmal

Total Dose from Hanford I-131

	$\overline{X}$ (mSv)
2–5 September 1963:	
Farm A	0.0019
Farm B	0.0056
Mesa	0.000043
Eltopia	0.000074
Pasco	0.000086
Ringold	0.00011
2 September – 1 October 1963:	
Farm A	0.012
Farm B	0.033
Mesa	0.00049
Eltopia	0.00099
Pasco	0.0014
Ringold	0.0095

TABLE II–4.V. SUMMARY OF CALCULATED EFFEC

Location	Adult man (Test person)		
	Effective Doses [mSv]		
	Average	95% confidence interval	
		Lower Bound	Upper Bound
Farm A	5.81E-04	1.94E-04	1.74E-03
Farm B	8.08E-04	2.70E-04	2.42E-03
Mesa	1.70E-04	5.65E-05	5.09E-04
Eltopia	1.08E-04	3.61E-05	3.25E-04
Pasco	2.16E-04	7.22E-05	6.47E-04
Location	Boy (4 years old)		
	Average	95% confidence interval	
		Lower Bound	Upper Bound
Farm B	2.06E-02	6.86E-03	6.21E-02

Magyarországon alkalmazott összetett környezeti dózisszámító programok - A paksi fűtőelem-tisztítási üzemzavar (2003) környezeti hatásainak modellvizsgálata

Az összehasonlításba bevont programok:

- RODOS (EU nemzetközi program OKF – Országos Katasztrófavédelmi Főigazgatóság)
- SINAC (AEKI – Atomenergiakutató Intézet (most EK) + OAH – Országos Atomenergia Hivatal)
- BALDOS, NORMDOS (PAE - Paksi Atomerőmű + AEKI)
- SS57 (OSSKI – Országos Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet)

Input: radioizotóp-leltár, kikerülési hányad = forrástag [PAE + OAH], meteorológiai adatok [OMSZ – Országos Meteorológiai Szolgálat]

Paks 2003 – Az erőmű kibocsátási adatai

A párhuzamos mérési eredmények közül a legkedvezőtlenebbet fogadták el. Az eredményeket a PAE Sugárvédelmi Osztály (SVO) közölte.

	Mérték-egység	**Nemesgáz**	**Aeroszol ($T_{1/2}$>24h)**	**^{131}I egyen-érték**	**^{89,90}Sr**
Kibocsátás IV.10. - V.10. között	Bq	$4{,}7.10^{14}$	$6{,}6.10^{9}$	$4{,}1.10^{11}$	$6{,}8.10^{6}$
Átlagos napi kibocsátás	Bq/nap	$1{,}6.10^{13}$	$2{,}2.10^{8}$	$1{,}4.10^{10}$	$2{,}3.10^{5}$
Üzemi korlát	Bq/nap	$1{,}8.10^{13}$	$1{,}0.10^{9}$	$1{,}0.10^{9}$	$5{,}2.10^{4}$
Korlát kihasználás	%	88	21	**1310**	**430**

Paks 2003 – Üzemi környezeti mérések

A paksi üzemi környezeti sugárvédelmi ellenőrző rendszer (ÜKSER) fontosabb mérési eredményei :

- A legintenzívebb nemesgáz-kibocsátás alatt, IV. 11.-én hajnalban az akkori szélirányba eső „A1” állomás dt.-mérője **250 nSv/h** többletet regisztrált. (Az országos OKSER hálózat riasztási küszöbszintje 500 nSv/h - a rendszer nem generált riasztást)
- A jódmérések közül a legnagyobb értékeket az elemi jód meghatározására szolgáló berendezések mutatták. A maximális érték, ami a szél mozgásának és a kibocsátás időbeli alakulásának megfelelően egy-két órán át volt mérhető, mintegy **5 Bq/m^3** volt.

Paks 2003 – Hatósági környezeti mérések

Az atomerőmű körül telepített hatósági környezeti sugárvédelmi ellenőrző rendszer (HAKSER) méréseinek döntő többsége a kimutatási határ alatti eredményeket hozott. Az egy évnél is lényegesen hosszabb felezési idejű komponensek esetében (^{137}Cs, ^{90}Sr stb.) a „kimutathatóság” azt jelenti, hogy az adott mintában a környezetben más okokból már korábban jelen lévő radioaktivitás *szignifikáns növekményét* kellene detektálni.

Néhány, az átlagost *jelentősen meghaladó* mérési eredmény:

- *Aeroszol*: **13 μBq/m^3 ^{131}I** a reaktortól mintegy 30 km-re;
- *Fű*: **43 Bq/kg ^{131}I** (száraz tömegre, a reaktortól mintegy 10 km-re);
- *In-situ gamma-spektrometria:* **260 Bq/m^2 ^{131}I** a reaktortól mintegy 1 km-re.

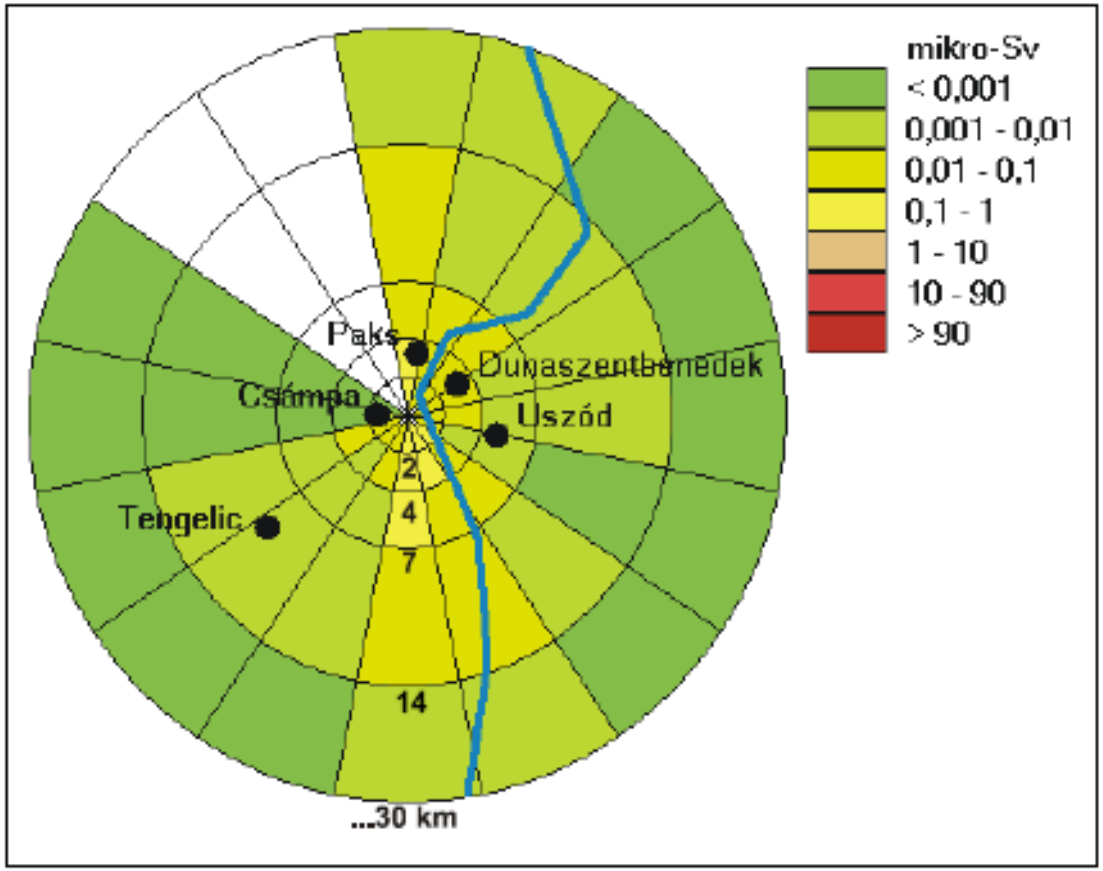
A radiojód tipikusan *1 – 10 μBq/m^3* koncentrációban Budapest levegőjében is nagy gyakorisággal megtalálható.

<u>A mérések érzékenysége megfelelő:</u> teljesül az az általános sugárbiztonsági kritérium, hogy a kimutatható radioaktivitás mennyiségéből becsülhető inkorporáció az „elhanyagolható” dózisnál (10 μSv/év) jelentősen kisebb effektív dózist eredményez.

Párhuzamos eredmények a környezeti radiojód-koncentrációra – 4 program, 7 alkalmazó

Eredmény	BALDOS (Paks)	BALDOS (AEKI)	SINAC (OAH)	SINAC (OAH-OMSZ)	SINAC (AEKI-OMSZ)	RODOS (OKF)	SS57 (OSSKI)
„A4” állomás ^{131}I konc. időintegrál [Bq/m^3.h]	28	28	166	227	250	15	13
„A4” ^{131}I felületi konc. [Bq/m^2]	772	772	5100	6050	6700	253	1600
Külső dózis [μSv]	0,059	0,059	0,203	0,048	0,035	0,011	0,025
Belélegzés dózisa [μSv]	0,092	0,092	0,083	0,043	0,045	0,022	0,015

SS57 program (OSSKI)
A kibocsátás összegzett hatása



4.1. ábra A radiojód és nemesgáz izotópoktól származó teljes sugárterhelés szektoronkénti megoszlása

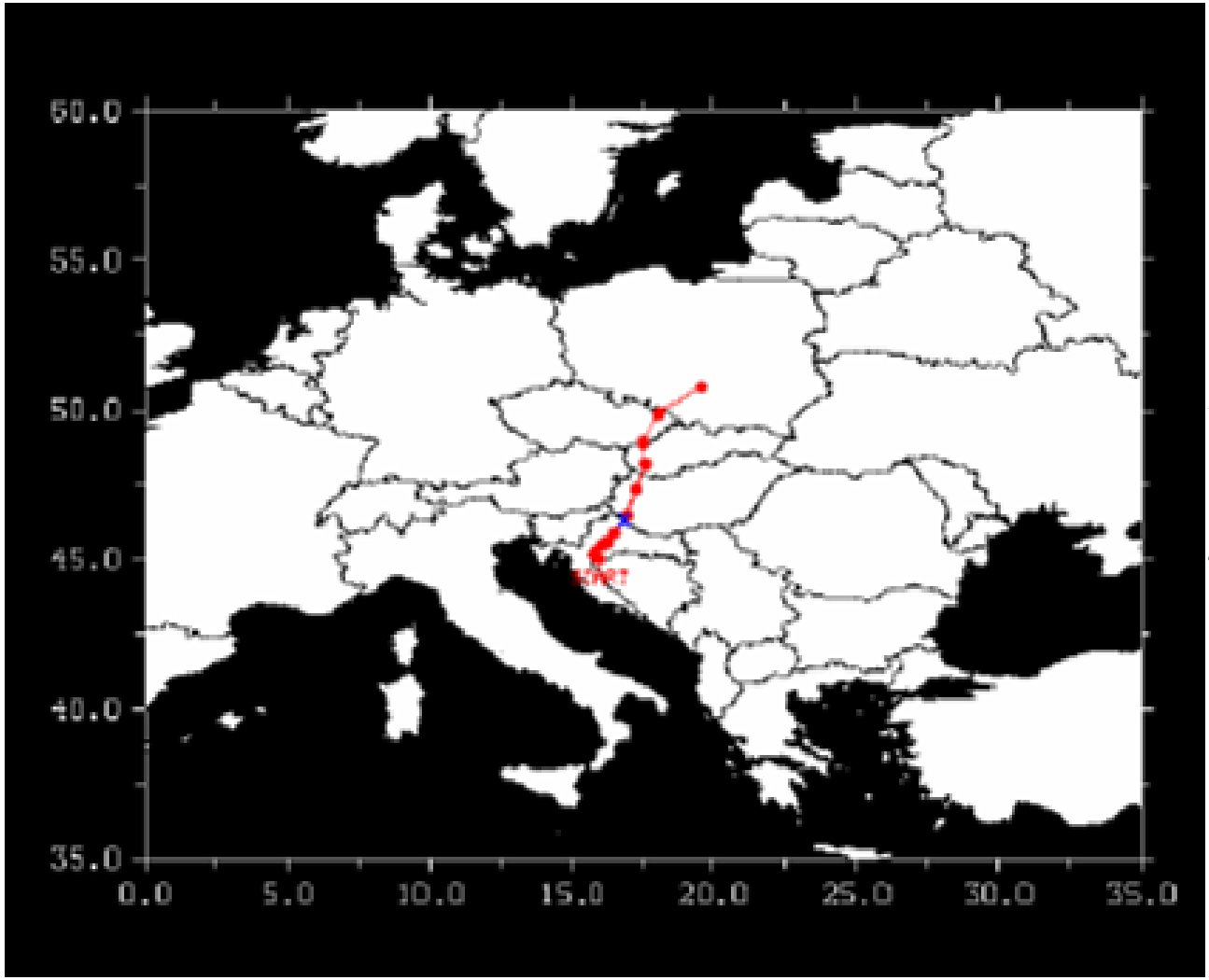
Figure 4.1. The total dose from radioiodine and noble gases in different sectors around the NPP

Nemesgáz dózis: külső dózis a felhőtől
Radiojód dózis: belélegzés a felhőből

SINAC – Magyar fejlesztésű program

OAH CERTA baleseti elemző központ alkalmazza a SINAC-ot következmény elemzésre (forrástag: helyi adatokból, 36 órás előrejelzés az OMSZ-tól)

SINAC – TRAJMET (OMSZ)



A programmal meghatározható a csóvatengely – ehhez pöff és csóva modell is kapcsolható.

Trajektória: egy légrészecske útja = a pozíció időintegrálja

RODOS – Döntéstámogató rendszer

A RODOS (Real-time, On-line, Decision Support System) fejlesztése 1992-ben kezdődött, 10 laboratórium működött közre az FZK Karlsruhe vezetésével – Most 20 európai országban 55 intézmény használja, tapasztalataikat visszacsatolják a fejlesztőknek.

Magyarországon 2001-ben installálták, 2003 óta a BM Országos Katasztrófavédelmi Főigazgatóságon (OKF) működik

Az országhatárokon is átnyúló radioaktív kibocsátások terjedését modellezi.

Az EU gondoskodik a RODOS folyamatos fejlesztéséről, az új verziókat a nemzeti RODOS központokban telepítik.

Korábbi verzió: UNIX - RODOS 6.0

Tervezett kiterjesztések: kémiai és biológiai szennyezések kibocsátása és terjedése, „piszkos bombák" hatása, folyók és tavak szennyeződése (a Dunával kezdik) - RIVTOX

RODOS – LINUX, JRODOS: új verziók készültek (LINUX, JAVA)

RODOS „light” – Windows-os változat a baleseti kibocsátások korai szakaszára

RODOS Hungary – HP 9000L Enterprise 1000 (UNIX dual server) gépen

ISDN2-n át elérhető az alábbi felhasználóknak: Paksi Atomerőmű, OAH és OSSKI (most Országos Közegészségügyi Központ Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Igazgatóság)

A RODOS forrásai: COSYMA program

COSYMA: Code System for MARIA (Methods for Assessing the Radiological Impact of Accidents) – Sugárbalesetek következményeinek becslésére (FzK Karlsruhe/Németo. + NRPB Oxford/Egyesült Királyság)

Atomerőművek által korábban használt kereskedelmi szoftver (PC COSYMA 1996.)

MUSEMET szegmentált csóvamodell

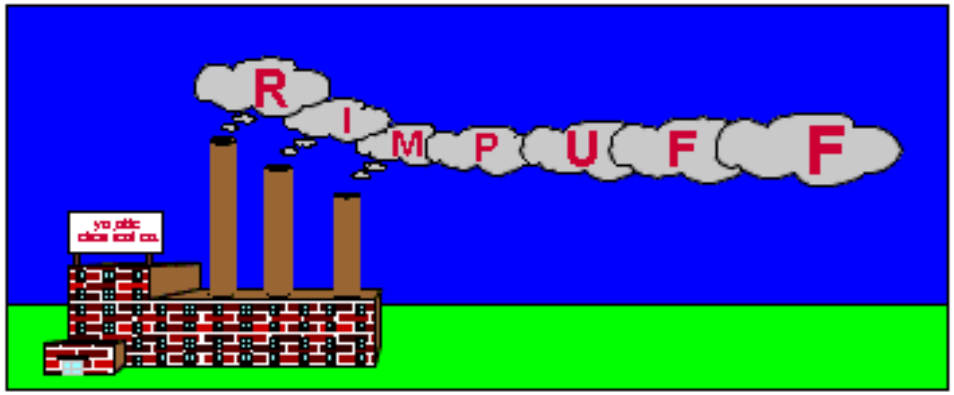
Gauss-csóvamodell 1 órás intervallumokra osztva

A RODOS forrásai: RIMPUFF program

http://www.risoe.dk/da/business_relations/Products_Services/Software/VEA_dispersion_models/RIMPUFF.aspx?sc_lang=en

RIMPUFF - RIsø Mesoscale PUFF model

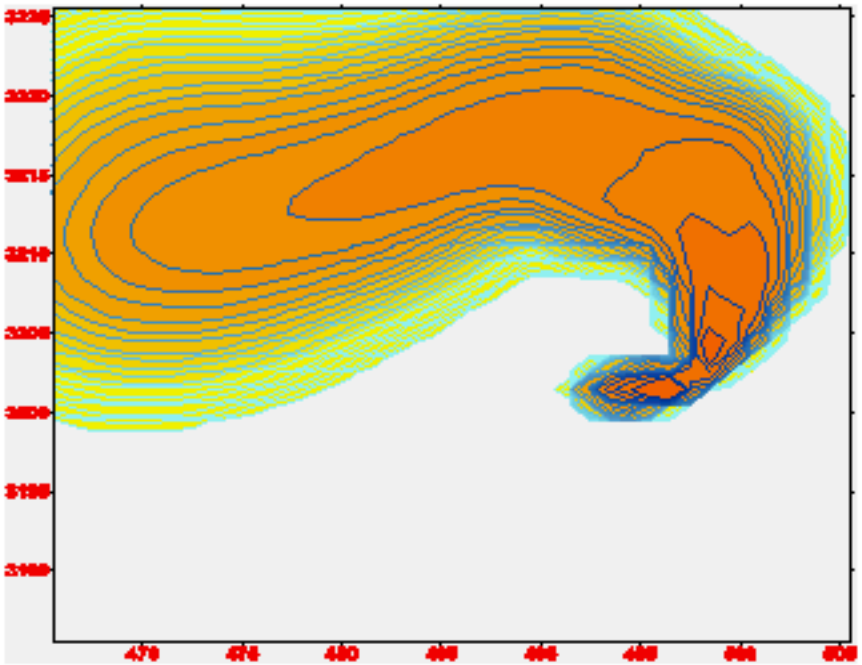
→ Print



Model Description

RIMPUFF is a fast and operational puff diffusion code that is suitable for real-time simulation of puff and plume dispersion during time and space changing meteorology. Also optimized for fast response on a PC this model is provided with a puff splitting feature to deal with plume bifurcation and flow divergence due to channelling, slope flow and inversion effects in non-uniform terrain.

A RODOS forrásai: RIMPUFF program



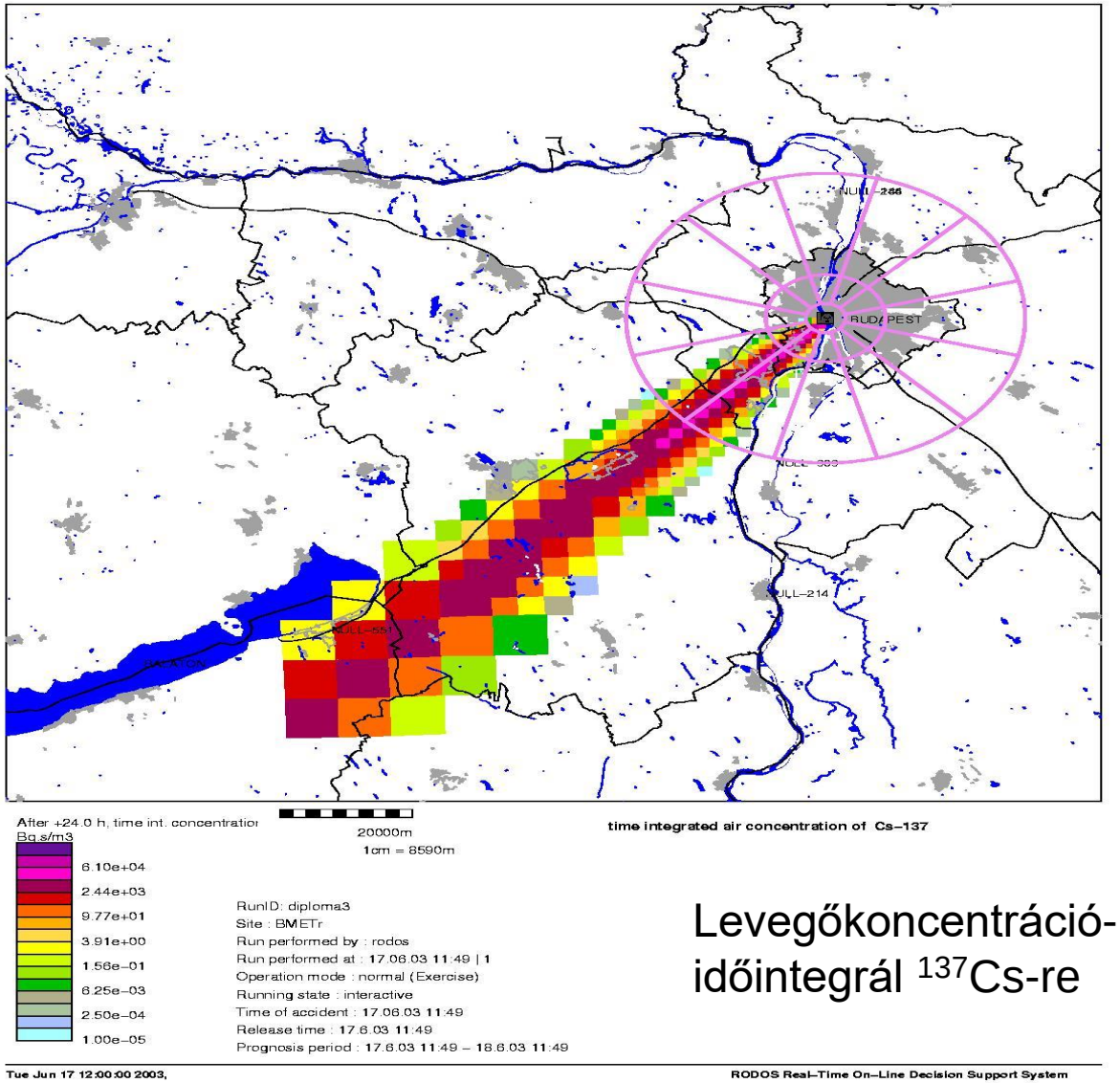
Guardo-kísérlet:
SF_6 kibocsátása különböző magasságokon egy folyóvölgyben, a mérési eredményekkel terjedési modelleket validáltak.

Model evaluation

A series of 15 full-scale dispersion experiments from the 1990 Guardo trials, carried out over complex terrain in Northern Spain are being analyzed. Actual wind and turbulence measurements taken during the experiment are used as input data for a series of simulations made with Risø's combined flow and diffusion model (LINCOM/RIMPUFF). Considerable effort is devoted to the testing of the improved features for taking into account wind shear and plume rise in RIMPUFF. A wind field "fitting" procedure for LINCOM has been tested in simulations of 2 of the Guardo experiments.

RODOS alkalmazása – Diplomamunka 2008-ból

Oktatóreaktor kibocsátásának modellezése



Levegőkoncentráció-időintegrál ^{137}Cs-re

Összefoglalás: néhány általánosság a terjedésről

- Homogén közegek: levegő és felszíni vizek; heterogén rendszerek: élő szervezetek, talaj- és kőzetvíz
- Fizikai-kémiai alapfolyamatok: advekció, diffúzió, reakció, ülepedés
- Tér- és időbeli terjedés számítása együtt és elválasztva is lehetséges
- SA és CF módszerek alkalmazhatók
- Végeredmény: a létrejött radioaktív koncentrációval jellemzett anyagok inkorporációjától származó lekötött egyenérték- és effektív dózis
- Baleseti helyzetben védőintézkedések hatása is modellezhető
- Előnyös, ha a számításokhoz érzékenység-analízis is kapcsolódik, valamint végrehajtható a „back-projection”

Radioaktív anyagok terjedése környezeti közegekben

Köszönöm a figyelmet!