

SZÉNHAMUK RADIOAKTIVITÁSÁNAK VIZSGÁLATA FOTOEMULZIÓS MÓDSZERREL

BUJDOSÓ ERNŐ, MEDVECZKY LÁSZLÓ és SZALAY SÁNDOR

Jelen vizsgálataink láncszemként kapcsolódnak ahhoz a széles arányú kutató munkához, amely egyikünk (SZALAY) vezetése alatt a *Kossuth Lajos Tudományegyetem Kísérleti Fizikai Intézetében*, majd az újabban létesült *Magyar Tudományos Akadémia Atommag Kutató Intézetében* hazai szeneekben felfedezett urán tartalommal kapcsolatban hosszabb ideje folyik [1—11].

Az eddig alkalmazott kutatási módszerekkel szemben cikkünkben a fotoemulziós módszerrel történt vizsgálatainkról számolunk be. E módszernek bizonyos szempontból igen nagy előnye van, amelyet itt szerencsésen használhatunk fel. A fotoemulzióba ágyazott radioaktív nyomokat tartalmazó anyagból kiinduló minden egyes α -sugárreszcseke pályája a mikroszkóp alatt láthatóvá válik. Ha a beágyazás után néhány hetet várunk és a lemezt csak azután hívjuk elő, akkor — amint azt könnyen beláthatjuk — az α -reszcsekék individuális észlelése miatt a módszer érzékenysége rendkívül nagy. A mikroszkóp alatt nemcsak a pálya, hanem az a szemcse is látható, amelyből a pálya kiindult, így arra nézve morfológiai megállapítások is lehetségesek.

E vizsgálatok célja az volt, hogy ha egy urán tartalmú szenet finom porrá őrölve tüzelnek el, akkor a kapott finom szemcséjű hamu (pernye) individuális és mikroszkóp alatt jól megkülönböztethető szemcséiben az urán tartalom egyenletesen oszlik-e meg, vagy pedig bizonyos morfológiailag leírható szemcsetípusban nagyobb koncentrációban van-e jelen.

Vizsgálati anyagunk porszéntüzelésből származó ajkai pernye volt. A pernye-szemcséket mikroszkóppal nézve két nagy csoportra oszthatjuk: szabálytalanok és gömb alakúak. Utóbbiak olvadáspontja a kazán tűzterének hőmérsékleténél alacsonyabb, ezért olvadtak gömbbé.

A pernye magfizikai emulzióba ágyazását az autóradiográfiás technikából ismeretes kettősrétegű eljárással oldottuk meg, azzal a különbséggel, hogy a fedőréteg folyékony emulzió volt. Az emulziókat a Forte Fotokémiai Ipari Kutató Laboratórium készítette [12, 13].

100 μ vastag, üveglemez hordozóval ellátott, vízszintesen fekvő emulziókra duzzasztás után ráhintettük a vizsgálati pernyét. Ezután, az előzőleg kb.

5 C°-on tárolt emulziót felmelegítve ráöntöttük kb. 40—50 μ rétegvastagságban, majd hideg légáramban megszáritottuk. Ezt a készítményt (szendvics) 100 nap múlva hívtuk elő ID 19 hívóban. Ilyen hosszú besugárzási idő alatt az ezüstszemcsék elhalványodása (fading) igen jelentős, ezért találtunk különböző szemcsesűrűségű pályákat.

A szendvics kiértékelése C. Zeiss LgOG mikroszkóppal történt 200x nagyítással.

Mikroszkópos vizsgálatok a következő adatok meghatározására irányultak:

1. melyek a pernye radioaktív szemcséi,
2. az össz-aktivitásnak hány százaléka van átlagosan egy bizonyos típusú pernye-szemben,
3. az egyes pernye-szemeknek mennyi az urán tartalma, illetve koncentrációja.

Az aktív pernye-szemekről szín, alak és a kilépő pályák száma szerint statisztikát készítettünk. A megállapított pályák száma alsó határt jelent, mivel az átlátszatlan szemcsék a pályák egy részét eltakarják, valamint nagyobb szemcsék esetén előfordulhat, hogy az alfa-részecske egész útját a szemcsében teszi meg. Megkülönböztettünk gömb és szabálytalan szemcséket, ezeken belül áttetszőt és átlátszatlant. Az alak szerinti osztályozás szigorú volt, és csak a határozottan kör keresztmetszetűeket soroltuk a szabályosak közé, mert a szabálytalan aktív szemek között jelentős számban fordult elő részben megolvadt, ill. olyan gömbbé olvadt szemcse, amelyhez kisebb vagy nagyobb szabálytalan tapadt hozzá. Ezen vizsgálat a szemcsék aktivitásának megoszlására ad felvilágosítást (1. tábla).

1. TÁBLA

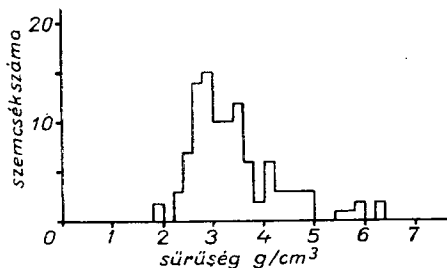
Pernye-szem	Megvizsgált szemcsék száma	Pernye-szemekből kiinduló összes pályaszám	Átlagos pályaszám (pálya/szemcse)	Aktivitás % [$\frac{\text{pályaszám}}{\text{össz-pályaszám}}$]
Gömb	átlátszatlan	723	3658	5,05
	áttetsző	37	241	6,51
Szabálytalan	átlátszatlan	332	1552	4,67
	áttetsző	15	72	4,80

Aktivitás megoszlása a pernye szemekben 100 nap expozíciós idő alatt

Az össz-aktivitás jelentős részének (70,59 %) a gömbbé olvadt szemcsék a hordozói, és az egy szemcséből kiinduló átlagos pályaszám is 9,6 %-kal nagyobb. Az össz-aktivitásnak 66,23 %-a az átlátszatlan gömbökben található, ami a gömbök által hordozott aktivitásnak 93,82 %-a.

Vizsgálatokat végeztünk arra vonatkozólag, hogy az összes gömbbé olvadt szemcsék közül hány százalék mutat aktivitást. 330x nagyítással 500 mikroszkóp látótérben az okulárba helyezett négyzetes hálózat alatt 828 db olvadt szemcsét figyeltünk meg. Ezek közül 621 db-nál észleltünk aktivitást. A 100 nap besugárzási idő alatt ezek alapján az aktivitást nem mutató szemcsékben levő uránmennyiség — feltételezve, hogy az urán, bomlástermékeivel radioaktív bomlási egyensúlyban van — $1,15 \cdot 10^{-12}$ g-nál kisebb, illetve a gömbbé olvadt szemcsék 75 %-ának urán tartalma ennél magasabb.

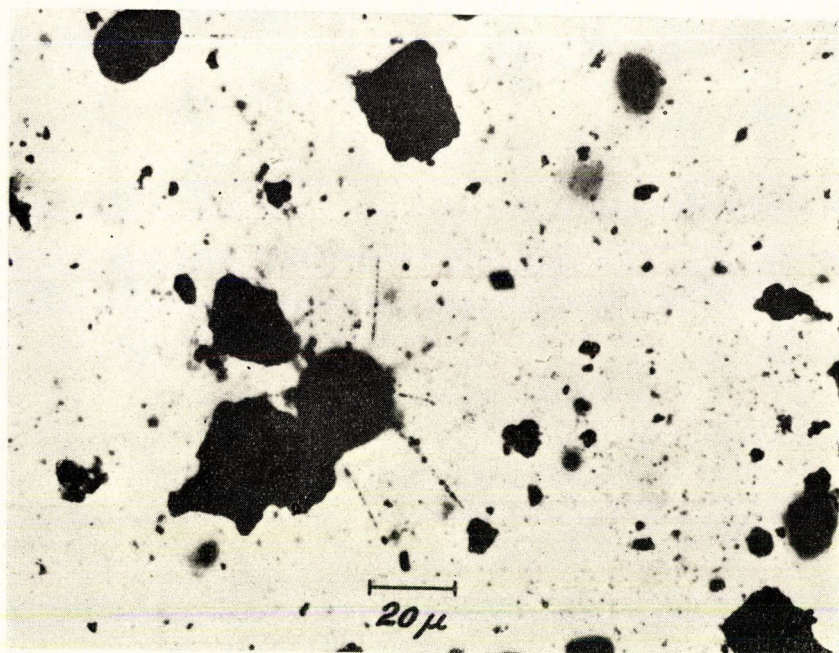
Méréseink szerint az aktivitás nagy részét az olvadt szemcsék hordozzák. Vizsgálataink további célja, ezek uránkoncentrációjának meghatározása, amelyhez ismernünk kell a szemcsék sűrűségét. Első tájékozódáshoz bromoformban végeztünk ülepítést mikroszkóp alatt függőcseppes tárgylemezen. A gömb alakú szemcsék többsége lesüllyed a bromoformban, tehát sűrűségük $2,9 \text{ g/cm}^3$ -nél nagyobb. A felszínen maradóknál sokszor meg lehetett állapítani a bennük levő gázbuborékokat, vagy a kisebb sűrűségű szabálytalan szemcsékkel való összetapadásukat. A $2,9 \text{ g/cm}^3$ -nél nagyobb sűrűségű gömb alakú szemcsék sűrűségének mérése csak Stokes törvény alapján, tiszta glicerinben a szemcsék süllyedés-sebességének meghatározásával történt. A glicerin viszkozitása 18°C -on 12 Poise volt. A süllyedés sebességének, valamint az átmérőnek a meghatározását vízszintesen elhelyezett 216x nagyítású mikroszkóppal olvastuk le, az e célra készült mikroszkóp fedő lemezzel határolt speciális küvettában. A hiba aránylag nagy (15 %) a szemcsék szélén fellépő diffrakció, valamint a mozgásuk közben történő átmérő-meghatározás nehézsége miatt. Ugyanezen okokból méréseinkben reális értéket csak 25μ -nál nagyobb átmérőjű szemcsék esetében kaphattunk. 100 db szemcsén végzett mérés eredményét az 1. ábrán tüntettük fel. A gömbbé olvadt szemcsék zömének sűrűsége $2,6 - 3,6 \text{ g/cm}^3$ értékek között van.



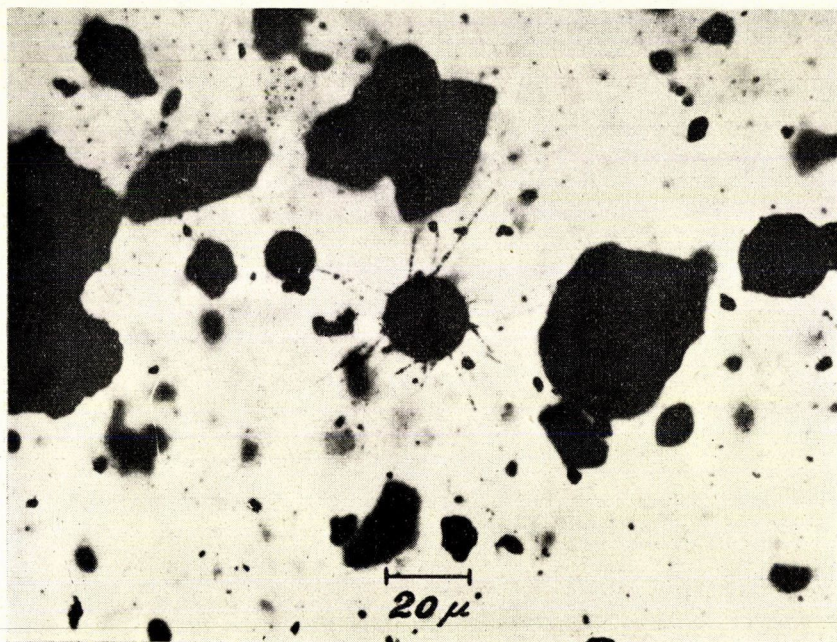
1. ábra

A gömbbé olvadt szemcsék sűrűség eloszlása

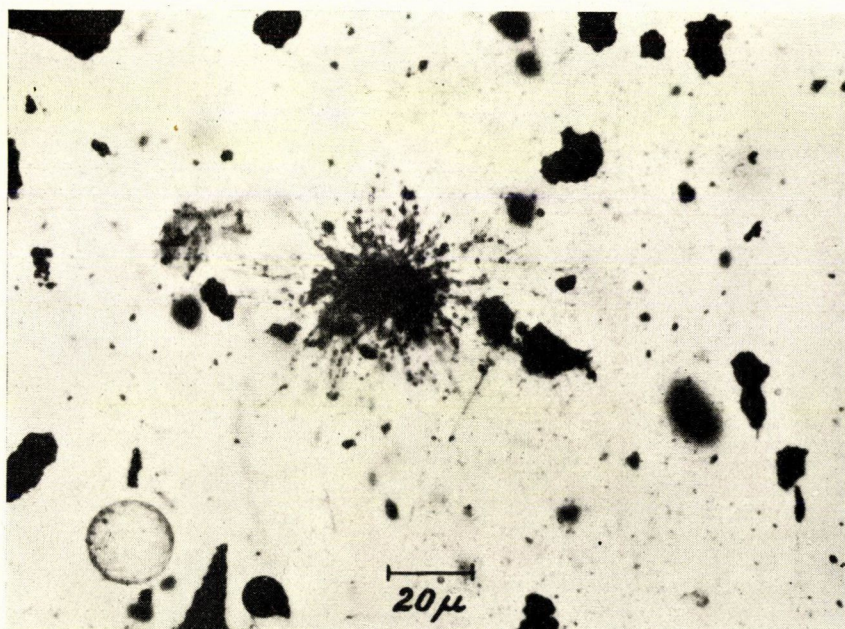
A 2. a—c. ábrák aktiv pernye-szemekről készült mikrofelvevételek. Jól megfigyelhető rajtuk, hogy a szabálytalan szemcsék nagy része inaktív. Az alfa-pályák száma alapján becsléseket végezhetünk a szemcsék urán tartalmára. (A felvételen a mikroszkóp-optika kis mélységélessége miatt, nem látható az összes pálya.) A mikroszkóp alatt megszámlolt pályák száma minimális érték, — a már említett okok miatt — így a belőlük meghatározott urán mennyiség pesszimális érték lesz. Az ábrákon látható szemcsék átmérője, tömege (3 g/cm^3 átlagsűrűséggel számolva) és urán koncentrációja a 2. táblán van feltüntetve.



2a ábra



2b ábra



2c ábra. A 2a—c ábrák atommagfizikai emulzióba ágyazott pernye-szemekről készült mikrofelvelelek

Az analitikai vizsgálatok [10] azt bizonyítják, hogy a szénhamuk aktivitása urántól származik, thórium tartalmuk vagy egyáltalán nincs, vagy legfeljebb $10^{-4}\%$. Utóbbi is igen ritka eset. Számításainkban ezek alapján a thóriumot figyelmen kívül hagytuk.

Az urán koncentráció értékére két adatot adunk meg. Minimális értéket kapunk akkor, ha feltételezzük, hogy a szemcsében jelenlévő urán bomlási egyensúlyban van és a leszámolt alfa-pályák az UI, UII, Io, Ra, Rn, RaA, RaC',

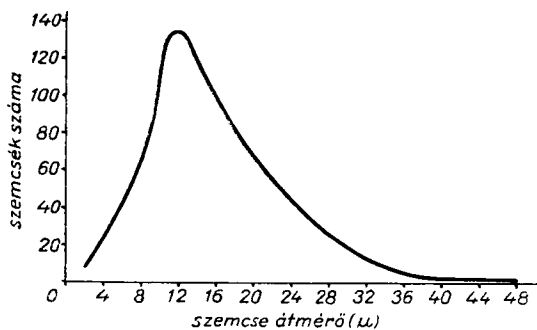
2. TÁBLA

Ábra	Pályák száma	Szemcse- átmérő μ -ban	Szemcse- tömeg 10^{-9} g	Tiszta U esetén		Bomlási egyensúlyban	
				U mennyiség 10^{-9} g	U kon- centráció ‰	U mennyiség 10^{-9} g	U koncent- ráció ‰
2 a	13	23	19,1	0,060	0,31	0,015	0,08
2 b	24	19	10,7	0,108	1,01	0,027	0,25
2 c	>50	12	2,7	>0,228	>8,44	>0,057	>2,11

2a—c ábrákon lévő aktív pernye-szemek urán koncentrációja

RaF tagoktól származnak. Maximális értéket kapunk ha feltételezzük, hogy nincs bomlási egyensúly és csak az UI és UII alfa-pályák szerepelnek.

Becsléseket végezhetünk továbbá a gömb alakú szemcsék átlagos U koncentrációjára. Az átmérő eloszlást 828 db szemcsén végzett mérésekből állapítottuk meg (3. ábra). A leggyakrabban előforduló átmérő 12μ körül van.



3. ábra. A gömbbé olvadt szemcsék átmérő eloszlása

Az egy szemcséből átlagosan kiinduló pályák száma 5,13 (1. tábla). Figyelembe véve, hogy a szemcsék 25 %-ának urán tartalma elhanyagolható (kisebb mint $1,15 \cdot 10^{-12}$ g) és a számításokat $3,0 \text{ g cm}^3$ átlagsűrűséggel végrehajtva, a gömb alakú szemcsék átlagos urán koncentrációja, tiszta uránt feltételezve 0,65 %, bomlási egyensúly esetén 0,16 %, az itt leírt vizsgálati anyagunkban.

SZALAY és ALMÁSSY [10,11] megállapították, hogy az urán rádióaktív egyensúlyban van a szénben, feltehető tehát, hogy a pernyében is, így a közölt urán koncentrációknál a bomlási egyensúlyra vonatkozó adatok a valószínűbbek.

Összefoglalásképpen megállapíthatjuk, hogy a porszén fűtéssel elfűtött urán tartalmú szén hamujában az urán nagyrészen a gömbbé olvadt, azaz alacsonyabb olvadáspontú pernye-szemcsékben található. Legközelebbi feladatunkat ezen pernye-szemcsék kémiai és ásványtani meghatározása fogja képezni.

*

A szerzők köszönetüket fejezik ki dr. POLSTER ALFRÉDnak (FORTE Foto-kémiai Ipari Kutató Laboratórium), aki a szükséges emulziókat készítette, továbbá JOST FRANCISKÁNAK és MEDVECZKY LÁSZLÓNÉNAK, a mikroszkópos munkákban nyújtott segítségükért.

IRODALOM

- [1] SZALAY S.: *Magyar Állami Földtani Intézet Évi Jelentése* 10 (1948) 5.
- [2] FÖLDVÁRI A.: *Magyar Állami Földtani Intézet Évi Jelentése* 10 (1948) 35.
- [3] SZALAY S.: *Nature* 162 (1948) 454.
- [4] SZALAY S., FÖLDVÁRI A.: *MTA. Matematikai és Természettud. Oszt. Közl.* 1 (1951) 60.
- [5] FÖLDVÁRI A.: *MTA. Műszaki Tudományok Osztálya Közleményei* 5, 3 (1952) 11.
- [6] SZALAY S.: *MTA. Műszaki Tudományok Osztálya Közleményei* 5 (1952) 167.
- [7] SZALAY S.: *Acta Geologica* 2 (1954) 300.
- [8] SZALAY S.: *MTA. III. Matematikai és Fizikai Oszt. Közl.* 4 (1954) 327.
- [9] SZALAY S.: *Magyar Kémikusok Lapja* 11 (1956) 203.
- [10] ALMÁSSY Gy.: *Magyar Kémikusok Lapja* 11 (1956) 206.
- [11] SZALAY S., ALMÁSSY Gy.: *MTA. Kémiai Oszt. Közl.* 8 (1956) 33.
- [12] POLSTER A.: *Magyar Kémikusok Lapja* 11 (1956) 109.
- [13] MEDVECZKY L., POLSTER A.: *MTA. III. Matematikai és Fizikai Oszt. Közl.* 7 (1957) 145.

(Beérkezett: 1956. X. 5.)