

Magyar Kémiai Folyóirat

Megindította Than Károly 1895-ben

100. évfolyam, 1994. április

A nukleáris kémia Magyarországon*

FEHÉR István

KFKI, Atomenergia Kutató Intézet, 1525 Budapest, Pf. 49.

FÖLDIÁK Gábor

MTA Izotópkutató Intézet, 1525 Budapest, Pf. 77.

GIMESI Ottó

BME Általános és Analitikai Kémiai Tanszék, 1521 Budapest, Gellért tér 4.

KEÖMLEY Gábor

BME Nukleáris Technikai Intézet, 1521 Budapest, Műegyetem rkp. 3-9.

KISS István

KFKI, Atomenergia Kutató Intézet, 1525 Budapest, Pf. 49.

KÓNYA József

KLTE-TTK, Izotóp Alk. Tanszék, 4010 Debrecen, Pf. 8.

LENGYEL Tamás

Veszprémi Egyetem, Radiokémia Tanszék, 8201 Veszprém, Pf. 158.

SOLYMOSI József

BME Fizikai Kémiai Tanszék, 1521 Budapest, Pf. 91.

VÉRTES Attila

ELTE-TTK, Magkémiai Laboratórium, 1117 Budapest, Pázmány Péter sétány 2.

Becquerel 1896-ben fedezte fel a radioaktivitást és ezután robbanásszerűen fejlődött ki a nukleáris tudomány. Az úttörők, Becquerel mellett, Maria és Pierre Curie (${}_{84}\text{Po}$, ${}_{88}\text{Ra}$ és a γ -sugárzás felfedezése), Rutherford (${}_{86}\text{Rn}$, α - és β -sugárzás és a ${}_{7}^{14}\text{N}$ [α , p] ${}_{8}^{17}\text{O}$ magreakció felfedezése) és a magyar Hevesy György (nyomjelzéstechnika és az aktivációs analízis kidolgozása) voltak. Becquerel és a Curie házaspár 1903-ban, Rutherford 1908-ban és Hevesy 1943-ban kapott Nobel-díjat.

A századfordulón és a XX. század első évtizedeiben a kémia és a fizika módszerei és az addig feltárt eredményei egyaránt szolgálták a nukleáris tudományok fejlődését és abban az időben még nem vált külön a magfizika és

magkémia. A vegyészek és fizikusok egymást kiegészítve művelték a nukleáris tudományt.

Magyarországon a radioaktivitás felfedezése után 15 évvel, 1911-ben szervezték meg az első nukleáris kutatólaboratóriumot, a Radiológiai Intézetet, a Budapesti Magyar Királyi Egyetem Kémiai Intézetének az épületében. A Radiológiai Intézet vezetője *Weszelszky Gyula* lett, aki 1917-ben egy 200 oldalas könyvet publikált „A Radióaktivitás” címmel. (A könyv borítóját az 1. ábra mutatja.) A magyar nyelvű könyv egy kiváló és teljes monográfiája a nukleáris tudomány 1917-ig elért eredményeinek. A Radiológiai Intézet legsikeresebb kutatási eredménye a radioemanáció mérésére kifejlesztett módszer és berendezés volt¹. Az eljárás szabadalmi oltalmat is kapott¹, és azt több külföldi intézetben is használták.

* Szerkesztette: Vértés Attila

Lett. n. 1085

Lxii

A 10
RÁDIÓAKTIVITÁS

IRTA

WESZELSZKY GYULA DR

A MAGYAR CHEMIAI FOLYÓIRAT XXIII. ÉVFOLYAMÁNAK
 MELLÉKLETE

52 KÉPPEL



Budapesti K. M. Tudomány Egyetem
 II. sz. Chemiai intézetének könyvtára

BUDAPEST

A KIR. MAGY. TERMÉSZETTUDOMÁNYI TÁRSULAT KIADÁSA
 BUDAPEST, VIII. ESZTERHÁZY-UTCA 16
 1917

1. ábra

Weszelszky Gyula 1917-ben publikált „A Rádióaktivitás” című könyvének a borítója.

Egy rövid ideig 1919-ben *Hevesy György* is a Budapesti Egyetem kinevezett professzora volt, de sajnos elhagyta Magyarországot és Ausztria, Németország, Anglia, Dánia és Svédország egyetemlein dolgozott igen eredményesen és munkáival jelentősen hozzájárult ahhoz, hogy kialakult az önálló nukleáris kémia (magkémia, radiokémia) tudománya.

Weszelszky nyugdíjba vonulása után *Imre Lajos* lett a Radiológiai Intézet vezetője. Az ő vezetésével végzett kutatások legfontosabb eredményeit a Hevesy által kidolgozott nyomjelzés-technika kiterjesztése jelentette a szorpciós problémák tanulmányozására².

Imre Lajos 1940-ben elhagyta a Budapesti Egyetemet (amely 1921-ben felvette a Pázmány

Péter nevet) és a Kolozsvári Egyetem Fizikai Kémiai Tanszékének professzora lett.

A nukleáris kémiai kutatások a háború alatt megszakadtak, majd az 50-es évek elején több kutatóhely is kialakult. A továbbiakban ezeknek a munkáját tekintjük át.

EÖTVÖS LORÁND TUDOMÁNYEGYETEM

(A Budapesti Pázmány Péter Tudományegyetem 1950-ben az Eötvös Loránd nevet vette fel.)

A Fizikai Kémiai és Radiológiai Tanszéken egy padlástér beépítésével létesült egy B-szintű izotóplaboratórium 1957-ben. A laboratórium eredeti célkitűzése az volt, hogy a Tanszéken folyó oldatszerkezeti kutatásokhoz fel lehessen használni a radioaktív nyomjelzéstechnikát. Az első mérések ionmozgékonyásra és öndiffúzióra vonatkozó adatokat szolgáltatottak³. (Meg kell jegyezni, hogy az öndiffúzió mérését a nyomjelzéstechnika tette lehetővé.)

A Tanszéken foglalkoztak a lágyszórtás bétasugárzás folyadékscintillációs mérés technikájának fejlesztésével is és ezt a módszert felhasználták a talajvíz mozgásának és a bor ¹⁴C-tartalmának a tanulmányozása során⁴.

A 60-as években a magsugárzás és az anyag kölcsönhatásán alapuló analitikai módszerek kidolgozásával is foglalkozott néhány kísérletsorozat⁵.

A nukleáris szerkezetvizsgáló módszerek alkalmazása 1966-ban kezdődött el a Tanszéken. Először a Mössbauer-effektus mérésére alkalmas berendezések kifejlesztése indult el, majd 1970-ben a pozitronannihilációs spektroszkópiai (PAS) laboratórium kiépítése is elkezdődött. A 80-as évek elején, egy Dubna-i tanulmányút révén, néhány mezonkémiai foglalkozó dolgozat is született a Tanszéken.

Magyarországon Mössbauer-spektroszkópiai (MS) kutató-laboratórium működik még a Központi Fizikai Kutatóintézetben és az ELTE-TTK Atomfizikai Tanszékén. PAS laboratórium szintén üzemel a KFKI-ban. A fizikus kollégák, együttműködések révén, végeznek kémiai szerkezetkutatással kapcsolatos méréseket is, de az ő tevékenységük, természetesen, elsősorban a fizikai tudományterülethez kapcsolódik.

A MS és PAS laboratórium ezideig mintegy 180 magyar és 130 külföldi kollégával folytatott publikációt eredményező együttműködést a kémia igen sok területén.

Nemzetközi visszhangot is kiváltó eredményeket a következő MS témákban értek el:

A megfagyasztott oldatok MS-ja révén megállapították, hogy a gyorsan fagyasztott (kven-cselt) oldatok MS vizsgálata révén az eredeti oldatok szerkezetére vonatkozó információkhoz is lehet jutni⁶. (A Mössbauer-effektus ugyanis csak szilárd fázisban mérhető.) Ez a módszer világszerte elterjedt Mössbauer-aktív atomokat tartalmazó oldatokban az oxidációs és koordinációs állapotok vizsgálatára. A mintegy 150 idevonatkozó publikációból egyet kiemelve megemlítjük, hogy a paramágneses spinrelaxáció MS mérése révén detektálni tudták a dimerizációt az FeCl₃ szerves oldószerekkel készült oldataiban⁷. Ezzel a módszerrel meghatározták a korrelációkat az oldószerek paramétereinek (donicitás, permittivitás) és a dimerizáció foka között. Például a kis donicitású és permittitású benzolban csak paramágneses MS komponens (szinglett és dublett) található, ami a dimér jelenlétét jelzi, míg a nagy donicitású és permittitású etanolban csak mágneses szextett látható a 2. ábrán és ez mononukleáris szolvát jelenlétét jelzi. Az acetonban és piridinben mindkét komponens (dimér és monomer) megjelenik.

Burger Kálmán professzor ötlete alapján dolgozták ki a kapilláris MS módszert, amely lehetővé teszi, hogy bizonyos esetekben szobahőmérsékleten is végezzünk MS-i méréseket folyadékokban⁸.

A MS-t elsőként használták a vas korróziós termékeinek tanulmányozására, és megmutatták, hogy a Mössbauer spektrumok alapján a korróziós réteg vastagsága, fázisösszetétele, mágneses tulajdonsága és szemcsemérete egyszerre meghatározható⁹. Ugyanilyen információk nyerhetők az elektrokémiai módszerrel kialakított passzív rétegekről is¹⁰.

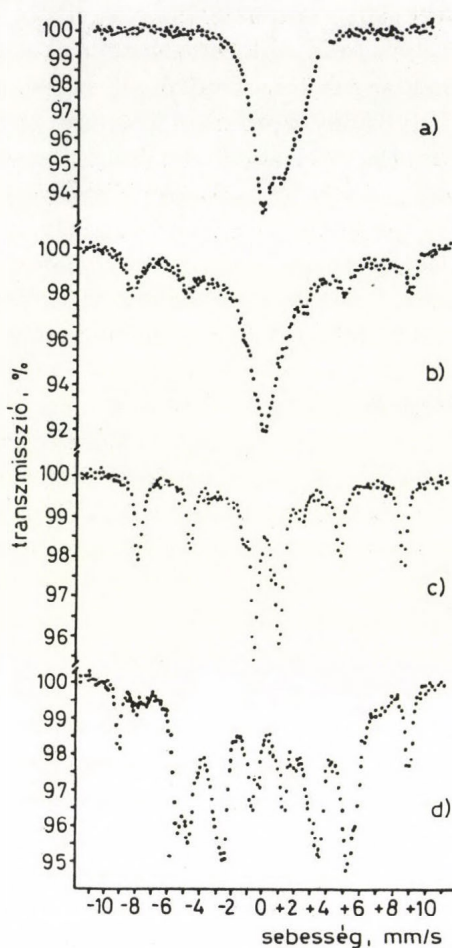
A galvánbevonatokban előforduló kismennyiségű ionos komponensek detektálására is igen alkalmas, sőt unikális módszernek bizonyult a MS¹¹.

Az utóbbi időben a természettudományok olyan fronttémáiban is alkalmazták a MS technikát, mint a szupravezetők¹² és a fullerénvegyületek kutatása¹³.

A MS laboratóriumban az elmúlt negyedszázadban 300 dolgozat készült.

A PAS laboratóriumban 1971 óta működik élettartam-spektrométer és 1991 óta Doppler-kiszélesedést mérő félvezető detektor.

A laboratóriumban készült dolgozatok közül kiemelésre érdemesek azok a publikációk, ame-



2. ábra

A FeCl_3 10^{-2} mol/dm³ koncentrációjú megfagyaszott oldatának Mössbauer-spektrumai 4,2 K hőmérsékleten. Az alkalmazott oldószer benzol (a), aceton (b), piridin (c) és etanol (d) volt.

lyek a folyadékelegyekben a pozitronium bomlási állandóját a buborékmodell segítségével írják le¹⁴. Ezekben a munkákban jól használható összefüggéseket lehetett javasolni a pozitronium közepes élettartamának a hőmérsékletfüggésére is. Ezeket az eredményeket a szakirodalom jelenleg is gyakran idézi és használja.

Az elektrokémiai bevonatokban kialakuló kristályhibák analízisére, illetve a fémmel levált hidrogén kidiffundálási mechanizmusának tanulmányozására, valamint polimerekben a szabad térfogat mérésére ugyancsak alkalmas volt a PAS¹⁵.

A szilárd fázisú anyagokban a hibastruktúra hatása gyakran elfedi a kémiai jellemzők befolyását a pozitronannihilációs paraméterekre. A laboratóriumban, az utóbbi időben végzett néhány kísérletsorozat megmutatta, hogy egykristályok esetén a kristályhibák hatása oly mértékben csökken, hogy a kémiai hatások (pl. spinállapot-változás) is detektálhatóvá válnak a PAS módszerével¹⁶.

A laboratóriumban készült és a PAS módszer kémiai alkalmazásával kapcsolatos publikációk száma több, mint 100.

A mezonkémia a hidrogénkötések tanulmányozására lehetett felhasználni néhány dolgozatban¹⁷.

Az ELTE Szervetlen és Analitikai Kémiai Tanszékén az ötvenes évek közepétől folynak nukleáris kémiai kutatások. A nyomjelzéstechnikát alkalmazták különböző kutatási feladatok megoldására.

Fontosabb eredményeket értek el néhány kénvegyület reakciómechanizmusának felderítésében¹⁸. Részletesen vizsgálták az oldószer szerepét a halogéncsere-reakciók mechanizmusában, továbbá a szerkezet-reaktivitás kapcsolatát. A halogénezési, illetve halogéncsere-reakciók kinetikájának tanulmányozásával kapcsolatos munkáikról mintegy negyven dolgozatban számoltak be, amelyekből kettőt kiemelünk^{19,20}.

Egy sor új radiometriás titrálási módszert dolgoztak ki és ezek alapján mintegy másfél tucat dolgozatot publikáltak²¹.

A radioaktív izotópok nyomjelzéstechnikai alkalmazását igen sikeresen használták a habkromatográfiás kutatásaik során és ezen a területen számos, nemzetközi mércével mérve is, kiemelkedő eredményt értek el^{22,23}.

BUDAPESTI MŰSZAKI EGYETEM

Az Általános és Analitikai Kémiai Tanszék Radioanalitikai Laboratóriuma 1964-ben kezdte meg működését.

A kutatási tevékenység a kezdeti időszakban a klasszikus radioanalitika területéhez kapcsolódott. Ide sorolhatók: a csapadékképzésen alapuló elválasztási eljárások, például a $\text{I}^- + \text{AgCl} \rightarrow \text{AgI} + \text{Cl}^-$ cserereakció, amely alkalmazást nyert a környezeti minták radiojód-tartalmának meghatározásánál.

A heterogén izotópcserén alapuló eljárások a saját-iont tartalmazó rosszul oldódó csapadékkal valósíthatók meg. Így például a $\text{I}^- \rightarrow \text{AgI}$, $\text{Hg}^{2+} \rightarrow \text{HgS}$, $\text{Cu}^{2+} \rightarrow \text{CuS}$, $\text{As}^{3+} \rightarrow \text{As}_2\text{S}_3$ rendszerekkel, amelyek atomreaktorok primerköri vizének elemzésére, valamint a hidrogénező katalizátorok szennyezőinek roncsolásos aktivációs analízisének kerültek felhasználásra²⁴⁻²⁶.

Foglalkoztak a szubsztöchiometriás csapadékos eljárásokkal is, pl. módszert dolgoztak ki a radiocézium elválasztására és meghatározására környezeti mintákból²⁷.

Foglalkoztak a sav-bázis és redoxi titrálások radiometrikus végpontjelzésével²⁸, valamint radionuklidok elválasztásával kelátkomplexes izotópcserével, pl. Zn^{2+} , Hg^{2+} radioaktív izotópjainak meghatározása kapcsán²⁹.

Az utóbbi években a hasadási radioaktív jódizotópok meghatározásával kapcsolatos kutatások kerültek előtérbe, mivel a radiojód igen nagy aktivitási hányaddal halmozódik fel az atomreaktorok használt fűtőelemeiben, amit potenciális veszélyforrásként kell figyelembe venni. Ennek a veszélyforrásnak az elhárításával kapcsolatos kutatásokba a tanszék intenzíven bekapcsolódott³⁰.

Az Általános Kémiai Technológiai Tanszéken a Paksi Atomerőmű Rt. megbízásából eljárást dolgoztak ki a Paksi Atomerőműben keletkezett híg- és tömény radioaktív hulladékoldatok szelektív kezelésére, temetés előtt.

Az eljárás során szilárd szorbensekkel szelektív módon távolítják el a radioaktív hulladékoldatokban jelenlevő oldott, komplex és lebegőformájú, hosszú élettartamú radioaktív izotópokat. Ez a szilárd anyag kerülhet majd a végleges elhelyezés (temetés) előtt cementezésre, vagy egyéb mátrixban történő rögzítésre. A radioizotópok (cézium, kobalt, ezüst és a későbbiekben megjelenő stroncium) szelektív eltávolítását szűrő-szorpciós eljárások kombinációjával végzik, melyhez az általuk kifejlesztett szorbenseket, fizikai és kémiai eljárásokat alkalmazzák³¹. (Az eljárásból szabadalom is született.)

A kifejlesztett eljárás egyes lépéseit a Paksi Atomerőmű radioaktív hulladékoldat-mintáin próbálták ki.

A Fizikai Kémiai Tanszék Radiokémiai Laboratóriumának a kutatási tevékenysége az utóbbi mintegy két évtizedben alapvetően az atomerőmű biztonságos üzemvitelét és a nukleáris környezetellenőrzést szolgálja. Az alábbi főbb területeken érték el az ország nukleáris biztonsága szempontjából igen fontos eredményeket;

- radiokémiai szelektív elválasztási eljárások,
 - laboratóriumi műszeres mérési eljárások,
 - ipari nukleáris mérőműszerek kifejlesztése és gyártása,
- ill. sorozatgyártásba való vitele.

(Ezeket az eredményeket a 198798, 201161 és 201162 számú magyar szabadalmak is rögzítik és védik.)

Alább ezek közül mutatunk be néhány jellegzetes, kiragadott példát^{32,33}.

A fűtőelem-kazetták elsődleges inhermetikuság-indikátorai közismerten a radiojód-izotó-

pok. Ezek direkt műszeres, γ -spektroszkópiás mérését gyakorlatilag lehetetlenné teszi a primerköri hűtővízben jelen lévő felaktivált korróziós termékek nagy aktivitása.

A laboratóriumban kifejlesztett szelektív, automatizálható elválasztási eljárás szerint, jódhordozók adagolása után, a primervíz jodidtartalmát elemi jóddá oxidálják, és folyamatosan kilevegőztetik. Oxidációs oldatban való elnyelés után a kumulált jodidoldat negyedóránként jut egy szcintillációs detektor mérőedényébe, ahol a minta, majd az edény öblítése után a háttér γ -spektrumát határozza meg a mérőrendszer. A csatolt számítógép a korrekciós számítások és a fotocsúcsok komponenseinek szétválasztása után az információt az öt jódizotóp koncentrációjaként (Bq/l) jeleníti meg.

A kísérleti berendezés a Paksi Atomerőmű egyik blokkján két éve üzemel.

Egy új, viszonylag egyszerű és gyors módszert dolgoztak ki ^{90}Sr vizes oldatokból való mérésére.

A módszer elvi alapja az a feltevés, hogy a mérendő mintában a ^{90}Sr - ^{90}Y szekuláris radiokémiai egyensúly már beállt. Ebben az esetben a ^{90}Y -t elválasztják, és aktivitását mérve — az elválasztás időpontjának figyelembevételével — az eredeti ^{90}Sr -aktivitást számolják.

A ^{90}Y elválasztásának alapja az ittrium-oxalát és ittrium-ammónium-oxalát vegyes sókeverék szelektív ioncserélő tulajdonsága. Megfelelő körülmények között (pH, oxalátkoncentráció, sók tömegaránya stb.) 90–95 %-os ^{90}Y -kihozatal érhető el.

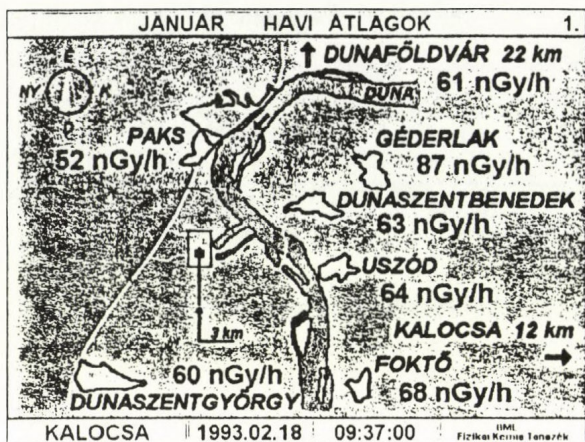
A mintaelőkészítés időigénye nem haladja meg a két órát, és alkalmas olyan mintákra is, amelyek esetében az előkezelés (feltárás stb.) eredménye savas, vizes oldat.

A Paksi Atomerőmű Rt. megbízásából kifejlesztették és 1992. decemberében a kalocsai ABC áruházban üzembehelyezték a lakosság tájékoztatására szolgáló nukleáris környezeti mérőállomást.

A mérőállomás alkalmas a gamma-dózisteljesítmény mérésére a természetes háttérsugárzás néhányszor tíz nGy/h értékétől a 10 Gy/h katasztrófaszintig, és helyszíni kijelzésére a számítógép-monitoron keresztül. Emellett az állomás méri és közli a helyi meteorológiai adatokat is (hőmérséklet, légnyomás, levegő, páratartalom, szélsébség, szélirány).

A mérőállomás a széles dózisteljesítménytartomány mérésére két mérőfejet tartalmaz. Egy nagyérzékenységű proporcionális számláló-

csöves szonda (MERIONEP gyártmány) biztosítja a háttér kellően pontos mérését, míg az energiakompenzált szilíciumdetektoros (VILATI, Eger gyártmány) szonda célszerűen a nagyobb dózisteljesítmény-tartomány megbízható mérésére szolgál. A meteorológiai adatokat AM-10 típusú állomás (Gamma Művek gyártmány) méri.



3. ábra

Dózisteljesítmény-átlagok térképes kijelzése.

Az adatok számítógépbe futnak be, amelyek nagyméretű monitorán olvashatók le a mérési adatok pillanatnyi értékei, ezek órás és napi átlagai, valamint a környező települések előző havi dózisteljesítmény-átlagai. Ez a monitoron egy térképen jelenik meg, mint a 3. ábrán láthatjuk.

VESZPRÉMI EGYETEM

A nukleáris kémiai kutatások az 1963-ban megalakult Radiokémia Tanszéken kezdődtek el.

A hatvanas évek közepén indult vizsgálatok a félvezetőkben lejátszódó sugárhatáskémiai folyamatok tisztázására irányultak. Ezek keretében kidolgozták a nagy tisztaságú bizmut, antimon és tellúr zónaolvasztásos előállításának módszerét, majd a tisztított nyersanyagokból Bi_2Te_3 és Sb_2Te_3 mintákat készítettek és radioaktív nyomjelzéses módszerrel meghatározták a különböző szennyezések mértékét és ezek hatását az elektromos tulajdonságokra. Nemzetközi kooperációban elektrongyorsítóban végzett besugárzás után mérték a sugárhatáskémiai változásokat. Később e vizsgálatokat más félvezetőkre is kiterjesztették³⁴ és sikerrel alkalmazták a szilícium bórtartalmának, illetve a bór laterális és mélységi eloszlásának meghatározására. A magsugárzások és anyag kölcsönhatása témakörben részletesen vizsgálták a kis- és közepes

energiájú gamma-sugárzás tartományában lejátszódó többszörös szóródás, nagy térszögű szóródás build-up folyamatok korrelációit. Az alapkutatási munkák lehetővé tették annak felismerését, hogy több, különböző energiájú gamma-sugárzás egyidejű alkalmazása lényegesen több információt szolgáltat, mint az általában alkalmazott abszorpciós és reflexiós módszerek³⁵.

A többkomponensű közegben fellépő komplex kölcsönhatások radiometriai hasznosítása csak akkor lehetséges, ha a detektorok lehetővé teszik a sugárzás egyes komponenseinek egyidejű, szelektív regisztrálását. A szendvics-szcintillátorokat alkalmazó mérés technika fejlesztése mellett olyan — passzív jelformálást nem alkalmazó — módszereket dolgoztak ki, amelyek a stabilitás növekedése mellett jelentősen növelik a jelfelbontást.

A kis átlagrendszámú mátrixokban lejátszódó fluoreszcenciás folyamatok vizsgálata keretében jelentős eredményeket értek el az izotópos gerjesztésű XRF spektrumok dekomponálási módszereinek fejlesztésében³⁶.

A környezeti és technológiai minták nyomelemeinek prekoncentrációja és detektálása során is születtek említésre érdemes eredmények.

A részben a földkéreg természetes eredetű radioaktivitása, részben a korábbi légköri atomrobbantások következményeként jelenlevő hosszabb felezési idejű hasadványtermékekhez, valamint sugárzó anyagot tartalmazó hulladékokhoz rendelhető aktivitás mérésénél különleges nehézségek jelentkeznek: általában igen kis koncentrációk meghatározását kell elvégezni nagyobb tömegű mátrixanyagban. E feladatok megoldásához néhány radionuklid szelektív elválasztására új módszereket dolgoztak ki, amelyek szinergikus hatást eredményező oldószerrendszerek (foszforsav-észterek, diketonok, koronaéterek stb.) felhasználásával elsősorban a folyadékfázisú ioncsere, a fordított fázisú kromatográfia és a sóoldékból végzett extrakció munkafogásaira épültek^{37–39}.

Az eredmények kiértékelése — a feladat jellegétől függően — sokcsatornás analizátorhoz kapcsolt félvezető detektorral, gamma-spektrometriával, folyadékszcintillációs technikával, valamint szilárdtest-nyomdetektorral történt.

A kialakított módszerek felhasználásával geológiai és környezeti minták természetes radioaktivitását, forrásvizek uránkoncentrációját, szennyvizek radionuklid-tartalmát határozták meg és neutronforrások zártágvizsgálatát végezték el^{40–42}.

A Paksi Atomreaktor kutatóival együttműködve dekontaminációs kinetikai vizsgálatokat végeztek ^{60}Co , ^{85}Sr , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{125}I és ^{131}Cs izotópok esetén.

Az epoxigyanta-bevonatrendszeren végzett helyszíni vizsgálatok alapján megállapították, hogy a laboratóriumi módszerrel meghatározott dekontaminációs tényező értékei — megfelelő kivitelezés esetén — a helyszínen készített bevonatrendszerre is mérvadóak⁴³.

E vizsgálatokhoz kapcsolódóan egyéb bevonatok minősítését is elvégezték, azzal a módosítással, hogy neutronáramban aktivált mintalemezeket készítettek el a bevonatot, majd e mintákat gyorsított korróziós hatásnak tették ki és a diffúziósebességet (diffúzióállandót) az átbocsátott korróziós termék aktivitásának mérésével határozták meg⁴⁴.

A nyomjelzéses technika és a ciklikus voltammetria egyidejű alkalmazásán alapuló vizsgálati metodikát dolgoztak ki az elektroszorpció, valamint a korróziós inhibitorok hatásmechanizmusának tanulmányozására, porszerű, illetve vákuumgőzöléssel kialakított fémelektrodokon. A jól definiált, kompakt nemesfém-elektrodok vizsgálatára korábban kidolgozott nyomjelzéses eljárás továbbfejlesztésével a poli- és egykristályos szerkezetű fémes szerkezeti anyagok szorpciói sajátosságait vizsgálták⁴⁵. Megállapították, hogy egyértelmű összefüggés van a korrózióálló acélok passzivitását alapvetően befolyásoló Cr(III)-tartalmú specieszek jelenléte és egyes agresszív anionok szorpciója között a duplex szerkezetű oxidréteggel borított acélok felületén. Összehasonlítva a hidrogén-szulfát/szulfát ionoknak a kromationok redukciója során indukált elektroszorpcióját acél, polikristályos Pt és Au, valamint Pt (111) elektrodokon, értelmezhetővé vált, hogyan befolyásolja a különböző fémek minősége és orientációja a hidrogén-szulfát/szulfát és Cr-tartalmú adszorpció felületi komplexek képződését⁴⁶.

DEBRECENI KUTATÓHELYEK

Debrecenben a radiokémiai kutatások nagyobb volumenű indulása az 1949-es évre tehető, amikor *Imre Lajos* professzor Kolozsvárról a Kossuth Lajos Tudományegyetem Fizikai Kémiai Intézetének az élére került. Imre Lajos 1940 és 1949 közötti kolozsvári tevékenységének legjelentősebb eredménye a nehezen oldódó

sók felületének tanulmányozása radioindikációs módszerrel⁴⁷. Ezen kutatások a Paneth-féle módszer kritikáját és korrekcióját adták.

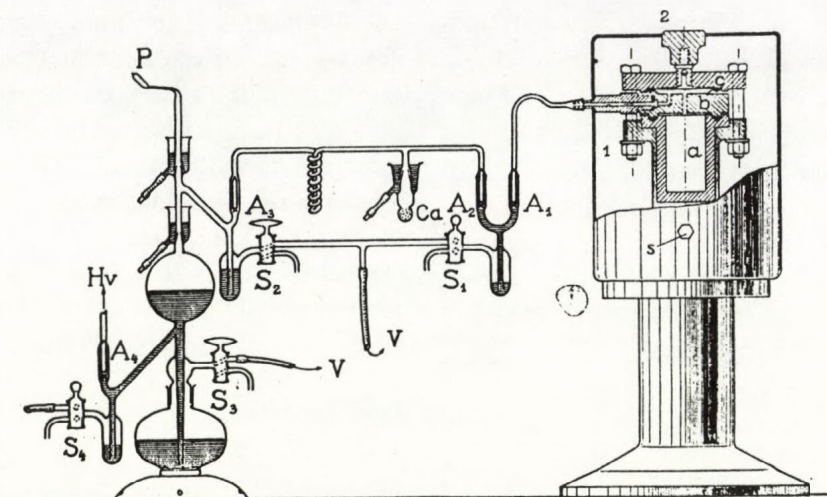
A szilárd-folyadék rendszerek tulajdonságainak ultrahív oldatokban történő tanulmányozása a határreteg új modelljének⁴⁸ felállítását tette lehetővé. Ez azon alapul, hogy az oldatban levő szolvatált ion és a szilárd fázisban lévő ion termodinamikai állapotösszege nem azonos. A határfelületi folyamatban kényszerccsatolás jön létre a két állapot között és így a felület közelében a félig deszolvatált ionok koncentrációmaximuma alakul ki. Ez gátolja a megkötődést és feloldódást, csökkenti a reakció sebességét, valamint az egyensúlyi megoszlásra is hatással van. Ezek a kutatások azokkal az impulzusokkal kezdődtek, melyeket a radioaktív atomfajták elegykristályszerű kicsapódásával, az ioncsere és adszorpció reakciókkal kapcsolatban O. Hahn professzortól kapott Imre Lajos.

A radiokémiai kutatások fellendülését jelentette 1960-ban, amikor a Kossuth Lajos Tudományegyetemen megépült az Izotóp Laboratórium, mely előbb a Fizikai Kémiai Tanszékhez tartozott, később önálló tanszéki egység lett.

Ez az új izotóp laboratórium új lehetőségeket adott a radiokémiai és ezen belül a nyomjelzéses technika alkalmazásának heterogén rendszerek kutatásában a következő területeken: elegykristály-képződés, fémekben, talajokban és egyéb biológiai anyagokban történő diffúzió^{49,50}, amalgámelektrodok és radioaktív izotópok anódos és katódos leválásának elektrokémiája⁵¹, adszorpció és cserereakciók vizsgálata⁵² különböző agyagásványok, fémek és félvezető oxidok felületén, kolloidok adszorpciója oxidok felületén, valamint korróziós kutatások⁵³. Ezeknek a kutatásoknak nagyobb része ma is művelt terület Debrecenben. Az eddigiekben a témákból kb. 300 dolgozat jelent meg.

A radiokémiai kutatások általában nem kívánják a radioaktivitás abszolút értékének ismeretét, mégis fontos feladat volt a radioaktív standardizálás terén végzett munka. Ennek egyik tudományos eredménye a ^{210}Pb (RaD) felezési idejének meghatározása és az erre kidolgozott kísérleti módszer⁵⁴. A ^{210}Pb izotóp preparátum előállításához emanáló ^{226}Ra preparátumot készítettek és ezt a 4. ábrán látható készülékben helyezték el.

A gyakorlati étellel való fontos kapcsolatot jelentett az a harmincöt éves munka, melyet a radioaktív standardizálás területén végeztek.



4. ábra

A radiumemanáció összegyűjtésére alkalmas berendezés. Az *a*-val jelzett helyen található az emanáló rádiumforrás, a *P* üvegfolában gyűjthető össze a ^{222}Rn . An a szelepeket, Sn a csapokat, Hv a nagy vákuumot jelenti.

A kutatások eredményeként standardokat állítottak elő és ezeket hazai és külföldi intézmények rendelkezésére bocsátották.

A Szalay Sándor vezette magfizikai műhelyben a fizikai kutatások mellett jelentős radiokémiai kutatások is folytak. Az α -részecskékkal kiváltott magreakciók tanulmányozásához ^{210}Po preparátumot kellett előállítani, amihez radiokémiai módszerek is kellettek⁵⁵.

Országos jelentőségűvé váltak az innen kiinduló orvos-biológiai radiokémiai kutatások. Kezdetben hisztokémiai reakciókat vizsgáltak ^{212}Pb -mal, ahol a kvantitatív mérés mellett a specieszek lokális eloszlását is meghatározták. Jelentősek a ^{210}Bi -tal végzett munkák, melyekben a vér mozgását és immunitási reakciókat tanulmányoztak. Ezen vizsgálatok bölcsője a Kísérleti Fizikai Tanszék és az 1953-ban létrehozott MTA Atommagkutató Intézete, melynek igazgatója és programadója szintén Szalay Sándor volt.

A következő terület, mely szintén e műhelyből indult ki az 1940-es évek közepén, az urán tulajdonságainak, illetve geokémiájának⁵⁶ kutatása volt. Szalay és munkatársai megállapították, hogy a természetben mindenütt nagy mennyiségben fellelhető humusznak az UO_2^{2+} -ion és más kétértékű kationok feldúsításában jelentős szerepe van. A felhalmozódás koncentrációtól való függése Langmuir-féle izotermával írható le. A tengervízben lévő UO_2^{2+} -ionok és a humuszban történő feldúsulás mértéke között kvantitatív összefüggést találtak és felállították a feldúsulás geokémiai modelljét, melyet a nemzetközi tudományos közvélemény is elfogadott.

Az Atommagkutató Intézetben a radiokémiai kutatások jelenleg a ciklotronnal kapcsolatos izotóptermelés és az orvos-biológiai kutatások szolgálatában állnak.

Az ATOMKI-ban kezdődtek azok a komplexkémiai nyomjelzős kutatások, melyeket a KLTE Szervetlen és Analitikai Kémiai Tanszékén folytattak a komplexkémiai állandók meghatározására és elválasztási feladatok megoldására.

A Debreceni Orvostudományi Egyetemen széles körben alkalmazzák a radioaktív izotópot kutatási, diagnosztikai és terápiás célokra. Az eredményes munka érdekében 1970-ben önálló központi izotóplaboratórium létesült. Radioimmunoassayhez kiteket állítottak elő, ^{32}P -vel nyomjelzett nukleotidok — adenzin-trifoszfát és guanozintrifoszfát — szintézisét oldották meg.

NUKLEÁRIS TECHNIKAI INTÉZET (NTI)

A Budapesti Műszaki Egyetem területére telepített reaktor országos fontosságú létesítmény, ugyanis az ország minden felsőoktatási intézménye használhatja kutatásra és oktatásra. Az NTI feladata a reaktor optimális üzemeltetése és kihasználása.

Az Intézet 100 kW max. termikus teljesítményű uszodatípusú kutató/oktató atmreaktora 1971 óta üzemel. Viszonylag kis termikus neutronfluxusa ($2 \cdot 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) miatt a meghatározás érzékenysége számos elemre nézve magától értetődően korlátozott, mégis a reaktor besugárzó csőposta rendszere, a jól felszerelt radiokémiai laboratóriumok és a nagy hatásfokú gamma-

spektrometriai mérőrendszerek számos analitikai feladat megoldását teszik lehetővé.

A Neutron Aktivációs Analitika (NAA) segítségével ipari, geológiai, biológiai, környezeti és régészeti minták nyomelem-koncentrációit határozták meg⁵⁷⁻⁶¹.

Régészeti tárgyak kémiai vizsgálatáról már a 18. sz.-ból ismerünk adatokat, de a két tudományág kapcsolata az elmúlt 25 évben igen gyors és látványos fejlődésen ment át. A kvantitatív analitikai kémia szinte minden módszerét alkalmazták régészeti tárgyak vizsgálatára. A régészet tárgyi emlékeinek vizsgálata három fő kérdéskörben nyújt segítséget: kormeghatározás, eredetmeghatározás, valamint a hamisítványok kiszűrése. Az NTI-ben 1981 óta foglalkoznak régészeti tárgyak neutronaktivációs analitikai vizsgálatával. Legtöbb esetben a cél az eredet, a származási hely meghatározása, főként kerámiák esetében.

Az eredetvizsgálat elvi alapja az, hogy az egy adott helyen készült kerámia speciális, arra a készítési helyre jellemző kémiai „ujjlenyomatot” visel. Ezen ujjlenyomat a nyersanyag ásványközettani, geokémiai hatását, a készítés technikáját, ill. az esetleges utólagos hatásokat tükrözi. Az azonos helyen és időben (egy műhelyben) készült kerámiatárgyak kémiai összetételük alapján csoportba foglalhatók és elkülöníthetők más műhelyek termékeitől. A módszer kiemelkedő szerephez jut, ha a kerámiatárgy nem visel magán olyan stílusjegyet, díszítést, bélyeget, amely lehetővé tenné a klasszikus régészeti meghatározást.

Az eredetvizsgálat az alkalmazott analitikai eljárással szemben számos követelményt támaszt. A NAA mindezeket messzemenően kielégíti: sokelemes módszer, az eredetvizsgálatnál elsődlegesen fontos járulékos és nyomelemek kimutatására alkalmas, érzékeny és pontos, jól automatizált eljárás, amely sorozatelemzésre alkalmas. Kerámiái eredetvizsgálatok terén ez a legelterjedtebben alkalmazott elemzési módszer.

A kialakult gyakorlatukban a következő elemeket mérik, ill. használják fel az adatfeldolgozásnál: Sc, Cr, Fe, Co, Rb, Cs, La, Eu, Yb, Lu, Hf, Ta, Th, U.

Számos kerámiái leletanyag vizsgálatát végezték el az elmúlt 12 évben. Egyiptomi kerámiák, római kori terra sigillaták, amforák, mécsek, avarkori kerámiák, a Budavári Palota középkori padló- és kályhacsempéi vizsgálatában vettek részt. Az eredményekből a munkában résztvevő régész szakemberek az egyes tárgyak műhelyhez való kapcsolásán túl fontos gazdaságtörténeti kérdések megválaszolásához is közelebb ju-

tottak (egyes műhelyek terítési körzete, szállítási útvonalak, kerámiaközpontok stb.).

A kerámiák mellett végeztek méréseket fémeken is, vizsgálták a koronázási palást arany hímzőfonalainak összetételét, hogy megtudják, igazolható-e a kémiai összetétel változásával is, hogy a palást különböző részei (gallér, kereszt-pánt, javítások) különböző anyagúak és nem egy időben kerültek rá. Az Au, Ag és Cu tartalom szignifikáns eltérése a különböző mintákban alátámasztotta a művészettörténészek ezen véleményét.

Az α - és tiszta β -emittáló nuklidok meghatározása az egyik legtöbb szaktudást és fáradságos műveletet igénylő analitikai feladat⁶²⁻⁶⁴.

Amíg az α -sugárzás jellemző a kibocsátó nuklidra és ily módon az kiválóan alkalmas spektrometriai elemzésre, a β -sugárzás folytonos eloszlást mutat, így β -sugárzó izotópok keverékének meghatározására önmagában a spektrometriai módszer nem alkalmas. Másrészt az α és részben a β részecskék nagy ionizációs teljesítménye (sűrűsége) miatt az önabszorpciót nehezen lehet kiküszöbölni vagy korrigálni. Általában mindkét probléma megoldható a mintában levő egy elemhez tartozó radioizotópok radiokémiai módszerrel történő elválasztásával.

A természetes α aktivitást okozó tórium és urán radioizotópok, valamint a mesterséges α aktivitás fő komponenseiként számontartott *plutónium*, *amerícium* és *kúrium* radioizotópjainak meghatározására radiokémiai módszereket fejlesztettek ki és alkalmaztak. Az általános elválasztási eljárások a minták széles körére alkalmazhatók, úgymint környezeti, biológiai stb., míg az egyszerűsített eljárásokat elsősorban a speciális nukleáris minták (pl. reaktorhűtővíz) analízisére alkalmazzák.

Az α -spektrometria viszonylag nagy érzékenységet mutat, általában mintánként jobb, mint 1 mBq, vagyis 10–100 mBq/kg. A kémiai kitermelést, minden elválasztás után, radioaktív nyomjelzőkkel ellenőrzik.

A primerköri hűtővízben lévő aktinidák analíziséhez a munka- és időigényes eljárás lényegesen egyszerűsíthető a kémiailag jelentős komponensek korlátozott száma miatt, valamint annak köszönhetően, hogy az α -spektrometria α -részecskékkel szembeni szelektivitása nagy a β és γ -sugárzáshoz viszonyítva. A hűtővíz-mintákat 0,45 μ m pórusméretű membránon kell átszűrni. Az α -emittereket tartalmazó szűrési maradékot szervesetlen savak keverékével (HF, HNO₃, HCl) roncsolják. A nagyobb vegyértékű aktinidá-

kat KMnO_4 -gyel oxidálják és NdF_3 csapadékot választanak le. A tervalens (háromvegyértékű) transzplutónium-nuklidok (Am, Cm) együttesen leválasztásra kerülnek, míg a magasabb oxidációs állapotban lévő aktinidák oldatban maradnak. A redukció után a szűrletből ugyanezzel a módszerrel egy második együttleválasztott α forrás (Pu, esetleg Np) készíthető.

A radiostroncium különböző fajta mintákból (pl. talaj, növény, csont, primervíz, nukleáris hulladék stb.) történő elválasztására korszerű módszert adoptáltak és fejlesztettek ki. Az elválasztási eljárás alapja a stroncium-nitrát komplexének szelektív extrakciója koronaéter (Sr. Spec, ElChrom Ind. Inc. gyártmány) segítségével.

A primerköri hűtővíz elemzése során a radiokémiai elválasztás egyszerűsíthető, mivel a hűtővíz sótartalma kicsi, viszont a mérés technika bonyolultabb az egyéb β és γ sugárzó stroncium és ittrium izotópok jelenléte miatt.

A csernobili reaktorbaleset miatt szennyeződött ukrainai talajminták $^{239,240}\text{Pu}$ és ^{238}Pu aktivitás-koncentrációinak analízisére került sor. Az érintetlen talaj felső rétegében a plutónium-izotópok aránya jó egyezést mutat a csernobili reaktorzónában számolttal és ez a talajszennyezés csernobili eredetét bizonyítja. A magyarországi minták plutóniumtartalmának meghatározása nemrég kezdődött.

Négy éve folyik a Paksi Atomerőmű primerköri hűtővizében az aktinidák meghatározása. Új módszer került kifejlesztésre a makrohibás fűtőelemek detektálására, amelynek alapja a primervíz aktinida-összetételének mérése. A hibás fűtőelem jellemzői (pl. kiegészi szint, kezdeti ^{235}U dúsítás) a $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ és $^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$ aktivitásarányok mérése alapján szintén meghatározhatók.

Különböző környezeti és biológiai mintákban (pl. talaj, csont, fű) ^{90}Sr -aktivitáskoncentrációja került meghatározásra. A ^{90}Sr , ^{137}Cs , aktinidák és Ce közötti korreláció vizsgálata is folyt a csernobili reaktorbaleset során szennyeződött ukrainai talajmintákban. A magyarországi talajminták ^{90}Sr -tartalmának vizsgálata szintén megkezdődött ezzel a módszerrel.

Folyékony nukleáris hulladékok ^{90}Sr aktivitása is meghatározásra került. A ^{90}Sr és a ^{137}Cs aktivitása közötti korreláció nem nyert bizonyítást.

Két éve folyik a Paksi Atomerőmű primerköri hűtővizében a stroncium izotópok (^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{91}Sr , ^{92}Sr) elemzése. Különösen a hibás fűtőelem kiegészi szintjének meghatározása válhat

lehetővé a $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ arány primervízben való mérése segítségével.

Az atomerőművek kéményén távozó radioaktivitás emisszióját szigorú előírások korlátozzák. A kibocsátást mind az erőmű, mind a felügyelő hatóságok ellenőrzik. Az utóbbi szervezet megbízásából mérési módszereket dolgoztak ki a különböző sugárzók meghatározására és mérték a Paksi Atomerőmű levegőoldali radioaktív kibocsátását mintegy öt éven keresztül⁶⁵⁻⁶⁷.

A szűrőkön akkumulálódó ^{89}Sr és ^{90}Sr meghatározására kémiai elválasztást végeztek.

Az erőmű által kibocsátott, szűrőkön leválasztott aeroszol és jód (^{131}I) aktivitásokat félvezető gamma-spektrometriás elemzéssel határozták meg. Az aeroszol-aktivitás zöme a ^{110m}Ag -től származott.

Az atomerőmű radioaktív nemesgáz-emissziójának meghatározására, az NTI által kifejlesztett, folyamatosan mérő, üzemi HPGe gamma-spektrométer mellett, szakaszos üzemi módszert és berendezést is kifejlesztettek. A minőségi és mennyiségi elemzést gamma-spektrométerrel végezték. Tipikus kibocsátások: ^{133}Xe , ^{86m}Kr , ^{88}Kr , ^{135}Xe , ^{41}Ar .

Az atomerőműveken és más izotóptechnikai létesítményeken kívül nem nukleáris objektumok is lehetnek a környezet radioaktív szennyezői. Több éves kutatási program keretében vizsgálták a hazai széntüzelésű erőművek radioaktív emisszióját, amelynek forrásai a szénben található urán és tórium természetes bomlási sorok tagjai, valamint a ^{40}K .

A vizsgált erőművek esetében szén, salak, elektrofilter-pernye és emittált pernye minták gamma-sugárzását mérték nagy hatásfokú félvezető detektoros gamma-spektrométerrel. A hatásfok növelése érdekében ún. Marinelli mérési elrendezést alkalmaztak. Méréstechnikai és egyéb szempontok figyelembevételével a mérésre kiválasztott és a számításnál figyelembe vett radioaktív izotópok: a ^{238}U -sornál — ^{234}Th , ^{214}Bi ; a ^{232}Th -sornál — ^{212}Pb , ^{228}Ac ; ^{208}Tl ; a ^{235}U -sornál — ^{235}U , ^{223}Ra .

MTA IZOTÓPKUTATÓ INTÉZETE

Az MTA Izotópkutató Intézet munkatársainak figyelmét a radioaktív izotópok elválasztásának igénye már az 1960-as években az ultramikro-koncentrációban oldott anyagok elválasztásának kutatására irányította, így a komplexkémiai elválasztásokra, az adszorpcióra és az ioncserére⁶⁸.

Miután egyensúlyi vizsgálatokkal kidolgozták a komplexek stabilitási állandóinak meghatározási metodikáját, megállapították a cink, az europium és az indium különféle oxisavakkal alkotott komplexeinek stabilitási együtthatóit, valamint a komplexképződést jellemző termodinamikai függvények és az adott sav disszociációs, illetve stabilitási állandója közötti összefüggés jellegét.

Az általuk kidolgozott metodikával végzett vizsgálataik szerint a jód és az ezüst platinán, illetve palládiumon lejátszódó adszorpciója során a felületen már kötött hidrogén cserélődik a jóddal, illetve az ezüsttel⁶⁹. Tanulmányozták a nátrium- és káliumionok kristályos cirkónium-foszfáton végbemenő öndiffúzióját, meghatározva a folyamat jellegét és termodinamikai paramétereit.

Kidolgozták az extrakciós ioncserével való ritkaföldfém-elkülönítés módját szerves gyantákon. Továbbá vizsgáltak új amorf és kristályos szerves ioncserélőket is, melyek mindegyikét sugárállóbbnak találták a szerves gyantáknál: extrém nagy (10–1000 MGy) dózissal azonban csak a cirkónium-foszfát áll ellen⁷⁰. Meghatározták és kísérletileg igazolták a cserefolyamatok mechanizmusát. Egyes szerves vegyületekkel végzett interkalációs vizsgálatok a hatásmechanizmus részleteit is tisztázták, pl. az aminok könnyű beékelődési lehetőségét, és, hogy a beékelődött molekulák ionos kovalens vagy hidrogénkötéssel kapcsolódnak-e a cirkónium-foszfát réteghez, melynek révén egyes esetekben (pl. difoszfonsav) a cirkónium-foszfát szerves származékai is felépíthetők.

Kedvező fizikai tulajdonságai (lágy gamma-sugárzás, rövid felezési idő, tehát a beteg viszonylag kis sugárterhelése) miatt a ^{99m}Tc a humán diagnosztikában a legelterjedtebb radioaktív izotóp. A stabilis és hordozható technécium-generátorok fejlesztése során megállapították a titán-molibdenát előállításának optimális feltételeit. Kimutatták, hogy a technécium pertechnekat formában, vízgőz jelenlétében a MoO₃-nál lényegesen alacsonyabb hőmérsékleten szublimál: e felismerés révén a kinyerhető ^{99m}Tc hozamát az irodalomból ismert 30 % kétszeresére lehetett növelni.

A ^{99m}Tc radionukliddal jelzett etilén-L-dicisztein molekulában az egyik karboxilcsoport oxigénjei és a Tc-oxo-oxigénje térbeli helyzete révén olyan komplexképző ligandum állítható elő, mely az enzim számára felismerhető térszerkezetű. A ¹³¹I-hippurán helyett használható készí-

mény, az előnyös enzim-szubsztrát kölcsönhatás révén alkalmas dinamikus vesevizsgálatra.

Csont-, vese- és máj-lép-affin anyagokat (pl. Na-etilidén-1-hidroxi-1, 1-difoszfónatot, Na-pirofoszfátot, Na-fitátot, Na-citrátot, Ca-glukonátot, hidroxi-di-ecetsavat) szintetizáltak, és megoldották egy lépésben történő jelzésüket ^{99m}Tc-mal.

Az in vivo radiofarmakonok kutatása terén főként a neuroendokrin, pl. a mellékvesetumrok képi megjelenítésére és sugárterápiás kezelésére szolgáló radiofarmakonok kifejlesztése terén érték el eredményeket. A noradrenalinanalóg meta-jód-benzil-quanidin jelzésére ioncserén alapuló radiohalogénezési eljárást dolgoztak ki, melynek — többek között — előnye környezetbarát volta, hiszen a szervesen kötött maradék radiojód könnyen kezelhető, kis térfogatú radioaktív hulladék⁷¹.

A debreceni ATOMKI ciklotronjában előállított, 13 óra felezési idejű ¹²³I orvosi alkalmazását teremti meg az a nagy fajlagos aktivitású ¹²³I-heptadekánsav-előállítás módszer, mely a szívizomban lejátszódó zsírsavmetabolizmus kinetikájának képsorozatból történő meghatározására alkalmas. A kardiológiai szempontból fontos gyors módszer lehetővé teszi a kórházi felhasználás helyén történő szintézist is. A ⁶⁷Ga radioizotóp cinktartartottól való gyors elválasztására és a gallium különféle komplexeinek előállítására szolgáló módszert tumorok, valamint operáció utáni gyulladások és tályogok lokalizációjára használják az orvosi gyakorlatban.

A szerves vegyületek tríciummal (³H) történő jelzése általában, az önradiolízis és izotópcseré kombinációjának tekintendő Wilzbach-módszerrel, általánosan történik. Ezzel szemben más, ugyancsak béta-sugárzó, pl. ¹⁴C-, ³²P-, ³⁵S-jelzéshez olyan speciális mikroszintetikus módszereket alkalmaznak, melyek során — a jobb radiokémiai hatások, tehát gazdaságosabb és kisebb környezetterheléssel járó szintézis érdekében — a radioaktív nuklidot lehetőleg a szintézissor utolsó lépésében specifikusan építik be abba a molekulacsoportba, mely az adott, általában biokémiai kutatás szempontjából szükséges.

Míg korábban elsősorban aminosavakat és nukleinsav-bázisokat jeleztek, újabban a súlypont a gyógyszerek és növényvédőszer felé tolódott el. A molekuláris biológiai szempontból döntő nukleotidok ³²P és ³⁵S izotóppal való jelzésére a kémiai módszerek helyett egyre inkább tisztán biokémiai, enzimikus szintézist használnak.

Tanulmányozzák az élő szervezetben lejátszódó metabolizmusok kutatása során a sejtek működésében általános jelentőségű — regulátor, mediátor vagy modulátor hatású — anyagcsaládot, az ejkozanidokat, melyek egy esszenciális zsírsavból, nevezetesen az arachidonsavból, enzimikus úton előállított bioaktív vegyületek⁷². Orvosbiológusokkal közösen végzett vizsgálataik alapvető eredményeket hoztak e vegyületek szerepének megismerése terén egyes reproduktív folyamatokban, a terhességi hipertónia kialakulásában és a hormonok/mediátorok sejtszintű hatásmechanizmusában.

Radiokémiai metodikai gyakorlatukra építve közel húsz éve foglalkoznak az in vitro klinikai vizsgálatok terén széleskörűen polgárjogot nyert, ¹²⁵I nyomjelzőt alkalmazó radioimmunoassay-k (RIA-k), így tiroxin, trijodid-tironin, kortizol, progeszteron stb. kutatásával. Jelzésre a Kloramin T módszert alkalmazzák, amellyel a jód-atom a fenolos hidroxilcsoporthoz képest O,O' helyzetben aromás elektrofil szubsztitúció révén építhető be a célvegyületbe. Az elválasztást adszorpciós kromatográfiával végzik: az adszorbens dextrángél, az eluens pedig víz-szerves oldószer elegy. Összefüggést állapítottak meg a vegyület, a jelző jód nuklidok száma és a megoszlási hányados között. A módszer a ¹²⁵I-dal jelzett jódtironinok, szteroidok, valamint fenolos hidroxicsoportot tartalmazó vegyületek elválasztására egyaránt bevált⁷³.

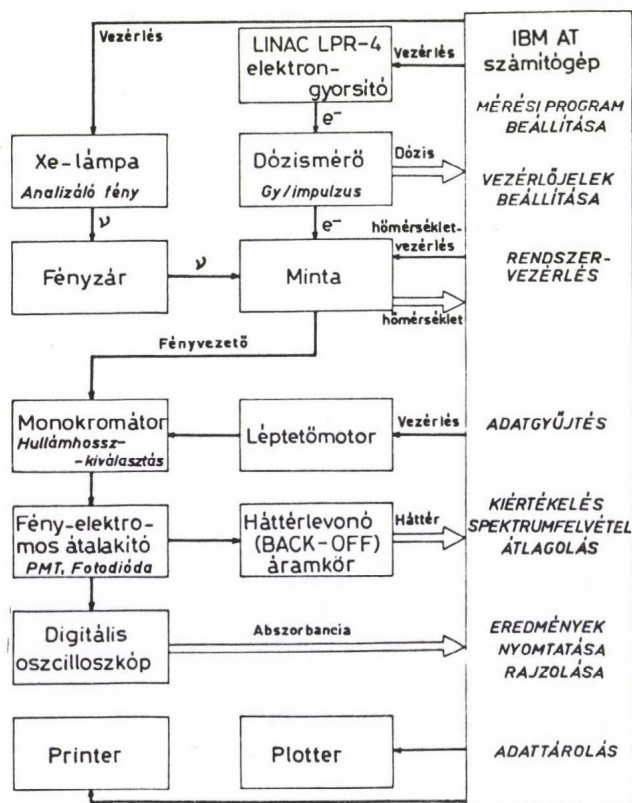
Számos RIA-t dolgoztak ki prosztaglandinok meghatározására, amelyeket biokémiai-biológiai kutatásokban használnak: az alkalmazási kutatások eredményesek voltak a ¹²⁵I-dal jelzett prosztaglandin-származékok jelzés- és elválasztástechnikájában és speciális metodikai problémáik megoldásában⁷⁴. A prosztaglandinokkal szerzett tapasztalatokon alapulnak azok a specifikus RIA-módszerek, melyek lehetővé teszik a biológiai rendszerekben rendkívül kis koncentrációban megtalálható, már említett, ejkozanoidok érzékeny, pontos és gyors meghatározását.

Az Intézetben több, mint negyed évszázada folyó sugárhatás-kémiai kutatások meghatározó területe a szénhidrogén-kémia. ⁶⁰Co statikus gamma-sugárzásával és végtermék-analízissel — többek között — megállapították, hogy az alkánok és alkének kémiai szerkezete és sugárhatáskémiai reakcióik szelektívek, annak ellenére, hogy az elsődleges 1 MeV sugárzási energia és a kémiai kötések közötti 0,1 eV nagyságrendű energiakülönbségek hét nagyságrenddel eltérnek egymástól⁷⁵. A gamma-radiolízis és a 163,4 nm

hullámhosszúságú, tehát 7,6 eV energiájú, brómlámpával végzett fotolízis termékösszetételének összehasonlításával megállapították, hogy az alkánok radiolízisekor a bomlás kb. 30–60 %-ban kisenergiájú szingulett molekulák útján megy végbe.

²¹⁰Po α - és a gamma-sugárzás termékhozájának összehasonlításával követték a sugárzás fajlagos ionizációja (LET) hatását, és ennek során kimutatták, hogy az adalékanyagok (aromás szénhidrogén, jód) hatása jelentősen elmarad a gamma-sugárzás esetén észleltől, ami a nyomonban lejátszódó folyamatok kompetíciójával magyarázható.

Az elmúlt tíz év során statikus vizsgálataikat impulzusradiolízissel egészítették ki, melynek feltételét 4 MeV energiájú, 2600, illetve 80 ns impulzusszélességű, LINAC-rendszerű, számítógéppel vezérelt elektrongyorsítóval és kinetikus spektrofotometriás mérőegységgel felszerelt laboratóriumuk teremtette meg (5. ábra)⁷⁶.



5. ábra

A számítógépvezérelt reakciókinetikai mérőrendszer blokk-sémája.

A mérőrendszer hatékony működésére munkatársaik külföldi laboratóriumokban korábban végzett kutatásaik során készültek fel, jelenleg viszont már rendszeresen fogadnak külföldről

posztgraduális egyetemi hallgatókat és vendégkutatókat⁷⁷.

Méréseikkel a szénhidrogén-kémia területén egyrészt kapcsolatot találtak a ciklohexán és származékai kémiai szerkezete és fluoreszcenciája között, másrészt kimutatták, hogy a xenon „nehézatomban” milyen befolyást gyakorol a gerjesztett molekula szingulett \rightarrow triplett és triplett \rightarrow szingulett spinátmenetére.

Polimerkémiai kutatásaik során adalékanyagok, elsősorban fenoltípusú vegyületek hatásának reakciókinetikáját követték pl. polietilénben. A tiszta akrilátok (hexándiol-diakrilát), valamint ciklohexán-elegeik vizsgálatával kimutatták, hogy a polimerizáláskor az átmeneti termékek nem anionok, hanem semleges gyökök.

Méréseket végeztek vizes rendszerekkel is, pl. az észterpolimerizáció, vagy a környezetvédelmi szempontból igen fontos aromások lebomlása kinetikájának megismerésére. Ezek közül a vizsgálatok közül kiemelkedő a biológiai, illetve biokémiai szempontból fontos egyes vegyületsaládoknak (silibinin, amidazon stb.) a hatásmechanizmus-vizsgálata, így a toxicitás szempontjából meghatározó oxidációs-redukciós folyamatoknak a követése, melyben természetesen ugyancsak meghatározó a polimerkémiai kapcsolatban már említett fenoxilgyökök szerepe. In vitro vizsgálataik hozzásegítettek annak megállapításához, hogy a molekula mely része aktív valamely biológiai hatás szempontjából.

A gamma-, illetve elektron-dozimetria terén az etanol-monoklórbenzol rendszert tanulmányozták. Reakciókinetikai méréseikkel megállapították, hogy az abszorbeált dózis mérése szempontjából kulcsfontosságú HCl döntő többségében a klórbenzol disszociatív elektronbefogása útján képződő Cl^- -inok révén keletkezik, de semleges gerjesztett klórbenzolból leváló Cl-atom is vezet sósavképződésre.

Az elméleti kutatásokból azoktól elkülönülő fejlesztő és technológiai tevékenység is kinőtt: így pl. gamma-sugárzó zárt sugárforrások készítése, sugártechnológiai rendszerek tervezése és előállítása, teleterápiás berendezések működésének biztosítása.

MTA KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓINTÉZETE

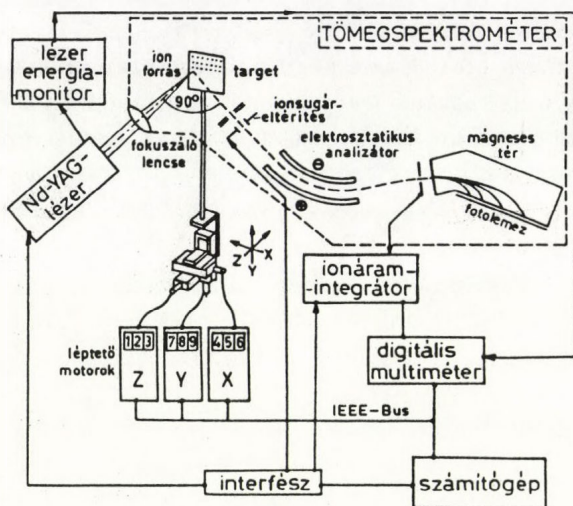
A Központi Fizikai Kutató Intézetben 1955-ben kezdődtek kémiai kutatások, egyrészt a fizikai kutatásokkal kapcsolatban felmerülő kémiai problémák megoldására, másrészt a létesülő

atomreaktor sokoldalú hasznosítására. E cikk korlátai között az e négy évtized során kialakult legfőbb kutatási irányok és a nemzetközileg is ismert eredmények hosszú sorának szemelvényeszerű, vázlatos ismertetésére és az ezernél több publikáció közül csak néhány említésére nyílik lehetőség.

A kutatások kezdeti időszakában a nukleáris tudományok és technika területén számos akkor már megszületett eredmény publikálatlan volt még, fontos anyagok, eszközök nem voltak beszerezhetőek. Így merült fel annak szükségessége, hogy a neutrondetektáláshoz ^{10}B izotópban dúsított BF_3 -at az intézetben állítsanak elő. Az izotópdúsítási kísérletekhez be kellett rendezkedni a tömegspektrometriára⁷⁸. E módszer fejlesztésénél lehetőség nyílt számos interdiszciplináris probléma megoldásában való részvételre, pl. a nemzetközi meteorológiai megfigyelések, geológia (olajkutatás, régészet) területén, nyomelemek meghatározásában, ion-molekula reakciók vizsgálatában⁷⁹. A későbbiek folyamán a világon az elsők között alkalmazták a lézerplazma-ionizációt, ami lehetővé teszi nem-vezető anyagok és felületközeli rétegek előzetes preparálás nélküli vizsgálatát⁸⁰. Aeroszol-részecskék kémiai elemzésére pedig repülési-idő-tömegspektrométert építettek. Az izotópdúsításra desztillációs módszert dolgoztak ki és az ennek során észlelt jelenségek hívták fel a figyelmet a gőznyomás-izotópeffektus és a molekuláris kölcsönhatások közötti összefüggésekre⁸¹.

E kutatások azután nemzetközi együttműködésben⁸² (University of Tennessee, Knoxville, USA és Max Planck Inst. für Chemie, Mainz, BRD) kiterjedtek a víz és vizes oldatok szerkezetének; egyszerűbb szerves vegyületeknek; az izotóp-izomereknek⁸³; az izotópelegek ideális viselkedéstől való eltérésének; a kondenzációnak a molekulák rezgéseire és a rezgések anharmonicitására gyakorolt hatásának⁸⁴ kísérleti és elméleti vizsgálatára, főleg a H/D és az $^{16}\text{O}/^{18}\text{O}$ izotópeffektusok értékelésével. Az Intézetben kifejlesztett lézerplazma-tömegspektrométer elvi vázlatát a 6. ábra mutatja be.

1959-ben kezdte meg működését a kutatóreaktor. Addigra, a Debrecenből meghívott tapasztalt radiokémikus, Imre Lajos professzor közreműködésével egy kutatócsoport kidolgozta azoknak a gyakorlatban használatos radioaktív izotópoknak előállítási technológiáját, amelyeket célszerű a felhasználók közelében készíteni. Az eredmények közül több bekerült a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség izotópgyár-



6. ábra

Lézerplazma-tömegspektrométer elvi felépítése.

tási kézikönyvébe⁸⁵. A magreakciókban keletkező nagy kinetikus energiájú atomok energiaeloszlása jelentősen eltér a termikus statisztikus eloszlástól. Az ilyen ún. forró atomok különleges reakciókba lépnek környezetük molekuláival és ezek révén radioaktív izotóppal jelzett vegyületek állíthatók elő^{86,87}. E vizsgálatokhoz főleg a halogénelemek radioaktív atomfajtái szolgáltak modellként. A csak radioaktív formában létező asztácium termikus és nagyenergiájú reakcióit szerves rendszerekben vizsgálták, nemzetközi együttműködésben. Az eredmények nagyban hozzájárultak ezen „ötödik halogén” kémiai természetének megismeréséhez, bekerültek a Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry-be és alapul szolgálnak az asztácium-vegyületek orvosi alkalmazásához⁸⁸. Az 1. táblázat a KFKI AEKI közreműködésével előállított asztáciumvegyület jellemzőit mutatja be.

A neutronaktivációs analízis kutatások is a reaktor üzembehelyezésével kezdődtek, de megfelelő részecskegyorsító berendezések is épültek, melyek közül néhányat más intézményekbe (pl. Dunai Vasmű) telepítettek, hogy a kidolgozott gyors módszereket az üzemi helyszínen lehessen alkalmazni. E mikroanalitikai módszer az extrém elemérzékenysége, a kimutatási határtól a százalékos összetételig terjedő jel-tömeg linearitása, esetenként egyéb előnyei révén igen széleskörű alkalmazásra talált számos hazai kutatóhellyel kialakult együttműködésben. Ezek közül néhány példa: GaAs és Si bázisú félvezető anyagok kutatása^{89,90}; szervesetlen mikroelemek hatásmechanizmusának vizsgálata növényekben és humánbiológiai rendszerekben^{91,92}; mikronyomok (haj, köröm, festék) kimutatása a kriminalisztikában; kozmokémiai alkalmazások⁹³; környezet-

1. táblázat

A KFKI AEKI közreműködésével előállított néhány új aromás asztáciumvegyület fizikai-kémiai jellemzői

Vegyület	T_{fp} °C	ΔH_v kJ/mol	R_{C-At} cm ³ /mol	μ_{C-At} Debye	D_{C-At} kJ/mol
C ₆ H ₅ At	216	42,91	20,17	1,53	187±20
At-C ₆ H ₄ -CH ₃	o	237	46,40	-	181±10
	m	237	46,65	-	181±9
	p	236	46,81	-	1,51
At-C ₆ H ₄ -CF ₃	o	212	44,50	-	177±9
	m	205	43,40	-	177±9
	p	208	42,60	-	176±9
At-C ₆ H ₄ -F	o	213	44,63	-	180±9
	m	206	43,19	20,49	180±9
	p	209	42,60	-	180±8
At-C ₆ H ₄ -Cl	o	258	50,78	-	174±9
	m	255	49,12	20,49	175±9
	p	253	47,61	-	180±9
At-C ₆ H ₄ -Br	o	303	-	-	176±8
	m	304	-	-	177±7
	p	305	-	-	178±9

védelmi vonatkozásban aeroszok toxikus és radioaktív komponenseinek felderítése⁹⁴ stb. Bekapcsolódtak a kutatások a biológiai aktivációs analízisek egységesítését célzó nemzetközi hiteles anyagminták körméréseibe és együttműködésben az Institute of Nuclear Sciences (Gent, Belgium) intézettel metodológiai alapvetési jelleggel új standardizálási elv kidolgozásába⁹⁵.

Az 1950-es években „ragályos” kutatási téma lett a szénhidrogének (és más szerves vegyületek) neutronlassító és reaktor-hűtőközegként való alkalmasságának vizsgálata. Ehhez a számításba jöhető anyagok sugárállóságát is tanulmányozni kellett⁹⁶. Így alakultak ki a KFKI-ban a sugárkémiai kutatások. Ezek kezdetben leíró jellegűek voltak, később a kutatói érdeklődés egyre inkább az elektrontranszport alapvető kérdései felé fordult⁹⁷. Az eredmények egy újabb összefoglalása a⁹⁸ munkában található. Jóllehet ilyen irányú kutatások ma is folynak, a munka fő iránya a szilárd/folyadék határretegekben fellépő töltéstranszport: az ezzel kapcsolatos elektrokémiai impedancia vizsgálatok⁹⁹ és fotoelektrokémiai kinetikai mérések felé tolódott. Központi szerepet játszik az ilyen irányú elméletekben a fraktális geometria fogalomköre¹⁰⁰. A kutatások mind az alapjelenségek, mind az alkalmazások vonatkozásában kapcsolódnak az atomerőművekben és kiegészítőelem-tárolókban fellépő korróziós folyamatokhoz¹⁰¹.

A magkémia körébe sorolhatók a KFKI-ban az atomenergia-termeléssel kapcsolatban folytatott alkalmazott kémiai kutatások is. Az 1950-es években a hazai uránérc-feldolgozás számára vé-

geztek előkészítő vizsgálatokat¹⁰². Amióta üzemel a paksi atomerőmű, széleskörű vizsgálatok folynak a szerkezeti anyagok korróziójával, a hűtővíz szennyeződésével, tisztításával, analitikájával, a radioaktív hulladékokkal kapcsolatban^{103–105}. A radiokémiában szerzett általános tapasztalatokat pedig a fűtőelemekben lejátszódó kémiai folyamatok részletes vizsgálatában hasznosítják.

A KFKI atomreaktorának üzembehelyezése után néhány laboratóriumi és környezeti radioaktív szennyeződés és inkorporációs eset ráirányította a figyelmet a sugárvédelem jelentőségére.

1960-ban az intézet létrehozta a Sugárvédelmi Osztályt (jelenleg a KFKI Atomenergia Kutató Intézet Sugárvédelmi Laboratóriuma), mely mintegy öt év alatt bevezette a külső és belső sugárzás személyi dozimetriáját, a munkahelyi ellenőrzési módszereket és a nukleáris környezetellenőrzést. Az ezt követő időszakban a sugárvédelem területén élénk kutatómunka indult, melyből itt most csak a radiokémiai tevékenységgel összefüggő belső sugárterhelés és a környezetellenőrző vizsgálatok főbb eredményei kerülnek bemutatásra.

A ¹³¹I gyártásánál elsősorban a levegőbe került radiojód és kisebb mértékben a targetként használt tellur izotópkeverék aeroszoljának belégzése jelentette a fő veszélyt. A pajzsmirigy-aktivitásmérésekkel¹⁰⁶, majd az 1964-ben üzembehelyezett egésztestszámlálóval^{107,108} nyomon lehetett követni az inkorporációs folyamatokat és ennek segítségével sikerült elfogadható értékre csökkenteni a jódgyártásnál fellépő belső sugárterhelést. Az izotópgyártás során előfordult néhány véletlen inhalációs eset, melyek közül részletesen a ⁶⁵Zn¹⁰⁹ és ⁶⁰Co¹¹⁰ eseteket vizsgálták. A neutrongenerátoroknál használt tríciumtargetek a felhasználóknál trícium-inkorporációt eredményeztek, melynek forrását és természetét behatóan tanulmányozták^{111,112}. A lakosság légköri atomfegyver-kísérletekből származó ¹³⁷Cs belső terhelését a hatvanas évek közepétől egésztestszámlálóval rendszeresen mérték¹¹³.

Nukleáris környezetellenőrző mérések a KFKI-ban 1961-től folynak. A hatvanas években a légköri atomfegyver-kísérletek okozta levegőszennyeződés és kihullás mellett az intézeti radioizotóp kibocsátásból származó szennyeződést nem lehetett kimutatni¹¹⁴. Az érzékeny és izotópszelektív mérések bevezetésével a radiojód-

gyártásból származó, légköri szennyeződés és kihullás már kimutathatóvá vált, azonban a mértéke több nagyságrenddel a korlát alatt volt¹¹⁵.

Jelentős eredmény a Paksi Atomerőmű környezetellenőrző rendszerének megtervezése és megépítése^{116,117}. Az elmúlt tíz évben az érzékeny és izotópszelektív mérésekkel sikerült meghatározni az atomerőmű-kibocsátásból eredő környezeti radioaktív szennyeződést, mely sok nagyságrenddel kisebb mint a hatósági korlát¹¹⁸. A Paksi Atomerőmű és a KFKI folyamatosan működő környezetellenőrző rendszere mutatta ki elsőként a csernobili atomerőmű-balesetből származó radioaktív felhő hazánkba érkezését.

A csernobili atomerőmű-baleset sugárzási következményeit sokoldalúan, még napjainkban is vizsgálják¹¹⁹. A gamma-dózisteljesítmény izotóponkénti járulékát, a talajban történő migrációját in situ gamma-spektrometriai módszerrel követik¹²⁰. Vizsgálták a talajra ülepedett radioaktív szennyeződés rezuszenzióját a légkörbe. Meghatározták a budapesti és néhány vidéki város lakóinak jód és cézium belső terhelését^{121,122}. Tanulmányozták a forró részecskék transzuránösszetételét¹²³.

*

A magyarországi nukleáris kémia tekintélyét növelte az a körülmény is, hogy *Braun Tibor* professzor kitartó és hozzáértő munkájának eredményeképpen egy Magyarországon szerkesztett folyóirat, a *Radioanalytical and Nuclear Chemistry* a szakma egyik világszerte kedvelt és olvasott publikációs fóruma lett. A folyóirat cikkeket és rövid közleményeket megjelentető számai párhuzamosan jelennek meg.

Összefoglalás

Magyarországon 1911-ben kezdődtek el a nukleáris kémiai kutatások, majd az 50-es évek elején ugrásszerűen megnőtt az ilyen témával foglalkozó kutatóhelyek száma.

Az elmúlt 80 év alatt, a magyarországi kutatások alapján több mint ötezer publikáció született ezen a tudományterületen és jelenleg is kb. ezer kutató dolgozik a nukleáris kémiai témán. A dolgozat az elmúlt nyolcvan év eredményeit vázolja fel.

Nuclear chemistry in Hungary I. Fehér, G. Földiák, O. Gimesi, G. Keömley, I. Kiss, J. Kónya, T. Lengyel, J. Solymosi and A. Vértes

The research in nuclear chemistry started in Hungary in 1911 and the number of laboratories increased strongly in the early fifties.

About five thousand papers were published on the basis of research in Hungarian laboratories during the last 80 years and about one thousand scientists are dealing with nuclear chemistry at the present time in Hungary.

The paper gives an outline of the results of the past 80 years.

IRODALOM

- 1 1119141 számú szabadalom: Eljárás és készülék rádiumemanációnak folyadékban való elnyelésére és az abszorbeált állapotban való pontos adagolására (1938. okt. 15.)
- 2 L. Imre: Oberflächengleichgewichte und innere Gleichgewichte in heterogenen Systemen. Z. f. Phys. Chem. abt. A., 164. 343. 1933.; 164. 364. 1933.; 171. 239. 1934.
- 3 J. Gergely, J. Tamás, A. Vértes, S. Lengyel: Mathematical analysis of a problem pertaining to the microcapillary method of diffusion coefficient measurement. Magy. Kém. Folyóirat, 70. 55. 1964.; Acta Chim. Acad. Sci. Hung., 39. 423. 1963.
- 4 P. Fodor-Csányi, J. Kasza, L. Fehér, K. Bérci: Movement of tritium-labelled water in soils. Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 36. 209. 1985.
- 5 Vértes A., Beck I.: A röntgensugárzás radioaktív izotópokkal gerjesztett analitikai alkalmazása, I. Magy. Kém. Folyóirat, 73. 492. 1967.
- 6 A. Vértes, D.L. Nagy: Mössbauer spectroscopy of frozen solutions. Akadémiai Kiadó, Budapest, 1990.
- 7 A. Vértes, I. Nagy-Czakó, K. Burger: Mössbauer study of equilibrium constants of solvates. Solvent-solute interactions in non-aqueous solutions of iron(III) chloride. J. Phys. Chem., 82. 1469. 1978.
- 8 K. Burger, A. Vértes: Capillary Mössbauer spectroscopy for solution chemistry. Nature, 306. 353. 1983.
- 9 Dézsi I., Vértes A., Kiss L.: A vas korróziós termékeinek Mössbauer-spektroszkópiai vizsgálata. Magy. Kém. Folyóirat, 73. 412. 1967.
- 10 A. Vértes, H. Leidheiser, M.L. Varsányi, G.W. Simmons, L. Kiss: Mössbauer studies of the passive film formed on tin in borate buffer. J. Electrochem. Soc., 125. 1946. 1978.
- 11 J. Jaén, A. Vértes, K.M. Tjutina, L.V. Kasmodami-anskaya, L. Kiss, R.V. Shepeleva: Mössbauer studies on electrodeposited tin-copper alloys. Electrochim. Acta, 30. 535. 1985.
- 12 E. Kuzmann, S. Nagy, Z. Homonnay, A. Vértes, I. Halász, M. Gál, B. Csákvári, T. Torkos, J. Bánkúti, I. Kirschner, Y. Wei, A. Nath: Struct. Chem., 2. 267. 1991.
- 13 A. Vértes, M. Gál, F. Wagner, F. Tuczek, P. Gütlich: ^{193}Ir Mössbauer study of chloro (carbonyl) bis(triphenylphosphine) (buckminsterfullerene) iridium. Inorg. Chem. és Magy. Kém. Folyóirat, közlésre elfogadva.
- 14 B. Lévy, A. Vértes, P. Hautojärvi: Correlation of ortho-positronium annihilation with surface tension in liquid and liquid mixtures. J. Phys. Chem., 77. 2229. 1973.
- 15 Cs. Szeles, A. Vértes: Hydrogen escape from vacancies in Electrodeposited nickel: a positron annihilation study. J. Phys. F: Met. Phys., 17. 2031. 1987.
- 16 A. Vértes, K. Süvegh, R. Hinek, P. Gütlich: Positron annihilation of spin-crossover in $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}(\text{ptz})_6(\text{BF}_4)_2$ single crystals. A J. Phys. Chem.-nek elküldve.
- 17 A.V. Bannikov, B. Lévy, V.I. Petrukhin, V.A. Vasilyev, L.M. Kochenda, A.A. Markov, V.I. Medvedev, G.L. Sokolov, I.I. Strakovsky, D. Horváth: Studies on the atomic capture of stopped negative ions in binary mixtures of ^3He with other gases. Nucl. Phys., 403A. 515. 1983.
- 18 Kőrös E., Maros L., Fehér I., Schulek E.: Kicséréldési reakciók vizsgálata ^{35}S radioaktív izotóppal. Magy. Kém. Folyóirat, 63. 213. 1957.; J. Inorg. Nucl. Chem., 4. 185. 1957.
- 19 E. Kőrös, M. Orbán: Iodine catalyzed iodine exchange reactions. Radiochem. Radioanal. Letters, 6. 319. 1971.
- 20 R.M. Noyes, E. Kőrös: Radical and polar mechanism for exchange of iodine with organic iodides. Accounts Chem. Res., 4. 233. 1971.
- 21 T. Braun, J. Tölgyessy: Radiometric titrations. A Review. Talanta, 11. 1277. 1964. and Book: Pergamon Press, Oxford, 1967.
- 22 T. Braun, A.B. Farag: The recovery of gold from alkaline cyanide media with a polyurethane foam sorbent. Anal. Chim. Acta, 153. 319. 1983.
- 23 T. Braun, M.N. Abbas, S. Török, Z. Szőkefalvy-Nagy: Radioisotope-induced X-ray fluorescence determination of phenylmercury, methylmercury and inorganic mercury in water after preconcentration on diethylammonium diethyldithiocarbamate-loaded polyurethane foam discs. Anal. Chim. Acta, 160. 277. 1984.
- 24 O. Gimesi, É. Bányai, M. Csajka, A. Szabadházi: Retention of radionuclides on metal sulphide precipitates, Talanta, 17. 1183. 1970.
- 25 L. Erdey, O. Gimesi, E. Szabó, M. Csajka: Determination of trace contaminants in hydrogenation catalysts by neutron activation analysis. Talanta, 17. 1157. 1970.
- 26 G.I. Csada, O. Gimesi, É. Bányai, M. Ördögh: The retention of iodine fission products on iodine precipitates. J. Radioanal. Chem., 21. 427. 1974.
- 27 A. Farkas, G. Segesváry: Microdetermination of radicaesium. Microchimica Acta, 1. 341. 1982.
- 28 L. Erdey, O. Gimesi, F. Szabadváry: Radiometric acid-base titrations. Talanta, 16. 445. 1969.
- 29 É. Bányai, O. Gimesi, A. Farkas: Separation of radionuclides by isotopic exchange using metal chelates and fixed metal sulphide precipitates. J. Radioanal. Chem., 16. 173. 1973.
- 30 G. Segesváry, D. Bódizs, O. Gimesi: Dependence of the detection limit of nuclear measuring systems on the gamma background. Polytechnica, 28. 63. 1984.
- 31 Gy. Pátzay, B. Tóth, E. Zöld: Isledovanije ionnogo obmena cezija sz primenenyijem klorogitallitioriolitovuh tufov. Per. Polytechnika, 25. 191. 1981.
- 32 Solymosi J., Nagy L.Gy., Zagyvai, P.: Felületi és térfogati radioaktív koncentráció meghatározása béta detektálással, I., II., III. Magy. Kém. Folyóirat, 98. 333. 1992.
- 33 J. Solymosi, P. Zagyvai, L.Gy. Nagy: Dosimetric measurement of the disintegration rate of fission products. Journal of radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, 162. 187. 1992.

- 34 *S. Kocsis*: Lattice scattering mobility of electrons in GaP. *Phys. Stat. Sol.*, **28**. 133. 1975.
- 35 *Házi E.*: Magsugárzások komplex kölcsönhatásának szerepe a radiometrikus módszerek fejlesztésében. *Izotóptechnika*, **21**. 305. 1978.
- 36 *L. Méray, E. Házi*: Decomposition of gamma or energy dispersive X-ray spectra with an iteration method. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.*, **109**. 397. 1987.
- 37 *L. Tóth*: On the separation of Cs, Sr and Ce. *Radiochem. Radioanal. Letters*, **59**. 245. 1983.
- 38 *E. Peimlí*: Extraction chromatography of Ce and Na using crown ethers loaded on a solid support. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.*, **144**. 9. 1990.
- 39 *T. Lengyel*: Investigations on the solvent extraction from molten salts by tracer technique. *J. Radioanal. Chem.*, **30**. 433. 1976.
- 40 *A. Raychaudhuri, J. Somlai*: Selective extraction of Ce(IV) on TBP and TTA loaded polyurethane foam. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters*, **166**. 153. 1992.
- 41 *Tarján S., Házi E., Fourati A., Pálos M.*: Nagy felbontású Ge(LI) detektoros gamma-spectrométer kalibrációja geológiai minta természetes radioaktivitásának meghatározására. *Izotóptechnika*, **31**. 177. 1988.
- 42 *S. Kocsis, T. Lengyel*: Assessment of the radioactivity of environmental samples by SSNTD technique. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, **19**. 769. 1991.
- 43 *L. Méray, E. Házi*: Effects of scattering on the XRF analysis of surface coatings. *Atom Phys.*, **63**. 171. 1988.
- 44 *Németh Z., Maleczki E., Méray L.*: Iontranszport vizsgálata festékbevonatokban radioizotópos nyomjelzéssel. *Izotóptechnika, diagnosztika*, **35**. 113. 1992.
- 45 *K. Varga, E. Maleczki, G. Horányi*: Towards a multipurpose radiotracer method for the investigation of sorption phenomena on constructional material samples. *Electrochim. Acta*, **35**. 817. 1990.
- 46 *Kolics A., Varga K., Maleczki E., Házi E., Horányi Gy.*: Fémek felületi tulajdonságainak vizsgálata radioizotópos nyomjelzéssel. *Magy. Kém. Folyóirat*, **96**. 296. 1990.
- 47 *L. Imre*: Über die Anwendbarkeit der radioaktiven Indikatormethode zur Bestimmung der Oberflächen fester Körper, I., II. *Kolloid-Z.* **99**. 147. 1942.; **106**. 39. 1944.
- 48 *L. Imre*: Neure prinzipielle Bemerkungen zur heterogenen Reaktokinematik, I., II., III., IV., *Kolloid-Z.*, **131**. 21. 1953.; **135**. 161. 1954.; **154**. 119. 1957.; **166**. 122. 1959.
- 49 *L. Bartha, T. Szalay*: The diffusion of thallium in polykristalline tin. *Int. J. of Applied Radiation and Isotopes*, **20**. 825. 1969.
- 50 *L. Imre, J. Kónya, J. Imre*: Über die Diffusion von Radongas (Rn-222) in porösen festes Körpern, *Acta Phys. Chem. Debr.*, **IX**. 17. 1963.
T. Varró, G. Somogyi, M. Najzer, I. Mádi: Study of borontransport process in plants with quantitative microautoradiographic methods ESNA XI. Szimp. Debrecen, 1980.
- 51 *L. Mádi*: Deposition of various radioactive elements on the surface of a platinum anode. *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **28**. 335. 1966.
- 52 *J. Kónya*: Study of surface reactions of Fe/Fe²⁺ heterogeneous isotope-exchange system with a radioactive indicator, I., II. *J. Electroanal. Chem.*, **84**. 83. 1977.; **109**. 125. 1980.
N. Nagy, J. Kónya: The exchange of ⁵⁴Mn and ⁴⁶Ca ions on montmorillonite reactive polymers, **17**. 9. 1992.
- 53 *L. Várallyai, J. Kónya, F.H. Kármán, E. Kálmán*: A study of inhibitor adsorption by radiotracer method. *Electrochimica Acta*, **36**. 981. 1991.
- 54 *L. Imre, J. Nagy*: Determination of the decomposition constant (half-life) of RaD (²¹⁰Pb). *Acta Phys. Chim. Debr.* **XX**. 101. 1976.
- 55 *A. Szalay*: Die Anregungsfunktionen der Umwandlungen ²⁷Al(α,n)³⁰P ¹⁰B(α,n)¹³N. *Z. Physik*, **112**. 29. 1939.
- 56 *A. Szalay*: Cation exchange properties of humic acids and their importance in the geochemical enrichment of UO₂²⁺ and other cations. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **28**. 1605. 1964.
- 57 *J. Bérczi, G. Keömley, Zs. Molnár, T. Várkonyi*: Detection and identification of emission sources on the basis of the trace element composition of aerosols, *Periodica Polytechnica*, **26**. 123. 1982.
- 58 *A.M. Barouni, L. Bakos, É. Zemplén-Papp, G. Keömley*: Reactor neutron activation analysis based on characteristic X-ray spectrometry. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters*, **128**. 225. 1988.
- 59 *Zs. Molnár, D. Bódizs, Z. Lengyel*: Application of neutron activation analysis in the Institute of Nuclear Techniques of Technical University of Budapest, *Periodica Polytechnica*, **1**. 45. 1993.
- 60 *Balla M., Gabler D.*: Terra sigillaták eredetének vizsgálata NAA módszerrel, *Arch. Ért.*, **109**. 74. 1983.
- 61 *M. Balla, G. Keömley, Gy. Rosner*: Neutron activation analysis for provenance studies of archaeological ceramics, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **141**. 7. 1990.
- 62 *N. Vajda, A. Ghods-Esphahani, E. Cooper, P.R. Danesi*: Determination of radiostrontium in soil samples using a crown ether. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **162**. 307. 1992.
- 63 *N. Vajda, J. LaRosa, T. Pintér, G. Keömley, D. Bódizs, Zs. Molnár*: Analysis of actinides in the primary coolant of a WWER-440 type reactor. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **170**. 1993.
- 64 *D. Bódizs, S. Dési, G. Keömley, T. Pintér*: Determination of radioactive concentrations of fission products in the primary coolant of nuclear power plants. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **147**. 347. 1991.
- 65 *Bódizs D., Keömley G., Gáspár L.*: Atomerőmű kéményéből vett gázminták radioaktív nemesgázkomponenseinek meghatározása. *Energia és Atomtechnika*, **XL**. 287. 1987.
- 66 *D. Bódizs, G. Keömley, L. Gáspár*: Development of nuclear measuring methods and instrumentation in INT, *Periodica Polytechnica*, **1**. 101. 1993.
- 67 *Bódizs D., Gáspár L., Keömley G.*: Radioaktív emissió széntüzelésű erőművekből. *Fizikai Szemle*, **4**. 135. 1992.
- 68 *Tétényi P.*: Az Izotóp Intézet 10 éves munkájáról. *Kémiai Közlemények*, **32**. 321. 1969.
- 69 *G. Tóth*: Adszorpcija ioda, mecsennova J¹³¹, na poverhosztyi platyini, *Radiokhimiya*, **5**. 411. 1963.
- 70 *L. Szirtes*: Inorganic in exchangers in chemical analysis (Ed.: Qurcschi, M.) Chapter 4, CRC Press, Boca Raton, 1991.
- 71 *J. Környei, J. Törkő, J. Volford*: Some considerations on the ^{99m}Tc-labeling of mercaptoacetyl-triglycine and its related compounds. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters*, s.a.
- 72 *I. Mucha, B. Tanács, S. Bagdány*: Arachidonic acid metabolism in reproductive tissues of pregnant Guinea Pig under in vivo circumstances, *Prostaglandins Leukotrienes and Medicine*, **12**. 207. 1983.
- 73 *G. Tóth*: A general approach to the chromatographic behaviour of ¹²⁵I-labeled iodothyronines and tyrosine methyl ester derivatives of steroids. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **121**. 17. 1988.
- 74 *I. Mucha, A. Riutta, H. Vapaatalo*: Factors affecting the reliability of direct radioimmunoassay for urinary 11-dehydrothromboxane B₂ with ¹²⁵I-labeled

- ligand: Albumin and heterogeneous immunoreactivity, *Eicosanoids*, 4. 1. 1991.
- 75 Radiation chemistry of hydrocarbons (Ed.: Földiák, G.), Akadémiai Kiadó - Elsevier, Budapest - Amsterdam, 1981.
- 76 Földiák G., György I., Hargittai P., Wojnárovits L.: Szénhidrogének impulzusradiolízise, A kémia újabb eredményei, 72. kötet, Akadémiai Kiadó, Budapest, 1991.
- 77 Földiák G., Wojnárovits L.: Impulzusradiolízis-kutatások az MTA Izotópkutató Intézetében, Kémiai Közlemények, s.a.
- 78 Kiss I., Jancsó G., Kákli Gy., Illy H., Opauszky I.: Tömegspektrométerrel a stabil izotópok nyomában. MTA Kémiai Oszt. Közl., 68. 1987/88.
- 79 Matus L., Opauszky I.: Gázfázisú reakciók vizsgálata tömegspektrométerrel. A kémia újabb eredményei, 45. MTA 165-260. 1979.
- 80 K.P. Jochum, L. Matus, H.M. Senfert: Analysis by laser plasma mass-spectrometry, *Fresenius Z. Anal. Chem.*, 31. 136. 1988.
- 81 Kiss I., Jancsó G., Jakli Gy.: Gőznyomás-izotópeffektus és intermolekuláris kölcsönhatások. A kémia újabb eredményei, 32. MTA 7-166. 1974.
- 82 G. Jancsó, W.A. Van Hook: Condensed phase isotope effect, *Chem. Reviews*, 74. 689. 1974.
- 83 G. Jancsó, W.A. Van Hook: The excess thermodynamic properties of solutions of isotopic isomers, one in the other. *Physica*, 91A. 619. 1978.
- 84 K. Tóth, G. Jancsó: Application of vapour pressure isotope effect to the determination of vibrational anharmonicity in the liquid phase. *Z. Naturforsch.*, 44a. 355. 1989.
- 85 L. Imre, F. Molnár, B. Tóth, G. Tóth: Hordozómentes radioaktív izotópok előállítása. KFKI Közl., 7. 1. 1959.
- I. Kiss: Utilization of the VVRS type reactor in Hungary for isotope production... Manual of radioisotope production, techn. Report. Ser. No.63. IAEA, Vienna, 1966.
- 86 Berei K., Vasáros L.: Gyors atomok szerves kémiai reakciói. A kémia újabb eredményei, 32. MTA 171-336. 1976.
- 87 Nagy Á.G.: Az Auger jelenség. A kémia újabb eredményei, 34. MTA. 1976.
- 88 K. Berei, L. Vasáros: Astatine compounds, *Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry*, 8th Ed., Springer, 107. 1985.
- 89 M. Ördögh, V. Upor-Juvancz: Activation analysis of high purity silicon, *Acta Chim. Hung.*, 26. 253. 1961.
- 90 E. Szabó, H. Rausik: Activation analysis of trace contaminants in GaAs semiconductor materials. *Acta Chim. Acad. Sci. Hung.*, 54. 231. 1967.
- 91 Ördögh M.: Biológiai anyagok aktivációs elemzése. A kémia újabb eredményei, 34. Akadémiai Kiadó, 1976.
- 92 András L., Bálint A., Csöke A., Nagy Á.: Gabonamagvak szemenkénti szelektálása $^{14}\text{N}(n,)^{15}\text{N}$ magreakciók alapján a fehérjetartalom javítására. Növénytermesztés, 28. 125. 1979.
- Zemplénné Papp É., Csöke A.: Növények neutrongenerátoros vizsgálata. *Izotóptechnika*, 21. 103. 1979.
- 93 Csajka M., Konsztantynova A.: Aktivációs analízis a kozmokémiában. A kémia újabb eredményei, 34. Akadémiai Kiadó. 1976.
- L. Bakos, M. Csajka, L. Cser, A. Csöke, N.N. Bogadkin, A. Elek, A. Kulcsár, A.Z. Nagy, E. Szabó, B. Vorsatz, É. Zemplén: Investigations of the composition of Luna-16 lunar samples, NASA, Washington, D.C., p.277. 1977.
- 94 H. Rausik, R. Baranyai-Flinár, Sz. Sándor, I. Sziklai-László, Sz. Török, É. Zemplén-Papp: Distribution of toxic elements in fly-ash particulates. *The Science of the Total Environment*, 130/131. 317. 1993.
- 95 F. De Corte, A. Simonits, F. Bellemans, M.C. Freitas, S. Javanović, B. Smodiš, G. Erdtmann, H. Petri, A. De Wispelaere: Recent advances in the co-standardization of neutron activation analysis. *Extensions, Applications, Prospects. of Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 169. 1, 125. 1993.
- 96 Kiss I., Róder M.: Hidrogénezett terfenilizomerek sugárstabilitásának vizsgálata. *Magy. Kém. Folyóirat*, 74. 336. 1968.
- I. Kiss, I. Kósa-Somogyi, E. Szabó: Organische Substanzen als Reaktormoderatoren, *Kernenergie*, 4. 905. 1961.
- 97 R. Schüller: Le role des processus primaire dans l'effet du pH lors de la radiolyse de l'eau. *J. Chim. Phys.*, 59. 267. 1962.
- 98 L. Nyikos, R. Schüller: Electrons in nonpolar liquids, in: *Physics and Chemistry of Solvation Part C*, eds: R.R. Dogonadze, E. Kálmán, V.V. Kornyshev and J. Ulstrup, Elsevier, Amsterdam, 329. 1988.
- 99 L. Nyikos, T. Pajkossy: Diffusion to fractal surfaces, *Electrochimica Acta*, 31. 1347. 1986.
- 100 T. Pajkossy, A.P. Borosy, A. Imre, S.A. Martemyanov, G. Nagy, R. Schüller, L. Nyikos: Diffusion kinetics at fractal electrodes. *J. Electroanal. Chem.* (közlés alatt)
- 101 R. Schüller, L. Nyikos, T. Pajkossy: Investigation of spent fuel element cladding in the storage basin of a WWR research reactor. IAEA-TECDOC-418 Vienna, 151. 1987.
- 102 E. Szabó, M. Fodor, P. Földes, F. Molnár, L. Stocker, M. Vigvári: Data on chemical treatment of Hungarian uranium ores. *Proc. 2nd. Int. Conf. on Peaceful Uses of At. Energy*, Geneva, 3. 245. 1958.
- E. Szabó, L. Bakos, B. Czeplédi, M. Fodor, P. Müller: Recent results in the processing of uranium ores. *Proc. 3rd. Int. Conference on Peaceful Uses of At. Energy*. Geneva, 1964.
- 103 M. Fodor: Die Anwendung des Komplexion-Ionen-austausch Trennfahrens bei der Uranbestimmung, *Kernenergie*, 12. 1115. 1959.
- 104 Szabó E., Fodor M., Pokó Z.: Ioncserélő gyanták felhasználása az uránkinyerésnél, *Magy. Kém. Folyóirat*, 68. 212. 1962.
- 105 E. Kelen, B. Vorsatz: Spektroalanalyse von Uranverbindungen. *Microchemica Acta*, 4-5. 737. 1966.
- A. Erdey-Schneer, E. Szabó, G. Csada I.: On metal ions in the water coolant of WWR reactor. *Proc. of Anal. Chem. Conf. I*. 376. 1966.
- 106 András A.: Inkorporációs vizsgálatok a KFKI-ban. *Atomtechn. Tájé.*, 6. 865. 1963.
- 107 A. András, I. Fehér: Measurements with the whole-body counter of the Central Research Institute for Physics, II. Symposium on Health Physics, Pécs, I. 149. 1966.
- 108 I. Fehér, A. András: Assessment of radioactive contamination in man. *Proc. IAEA-SM-150/16*. Vienna, 1972.
- 109 A. András, I. Fehér: Measurement of the retention and excretion of incorporated Z-65. *Health Physics*, 13. 915. 1967.
- 110 É. Beleznyay, M. Osvay: Long-term clearance of accidentally inhaled Co-60 aerosols in humans. KFKI-1992-36/K (Accepted in *Health Physics* in 1993)
- 111 J. Biró, I. Fehér, I. Mészáros: Investigation of tritide aerosols by use of personal aerosol sampler. *Proc. Aktuelle Strahlenschutzprobleme ÖSV*, Wien, 256. 1970.

- 112 J. Biró, I. Fehér: Tritium incorporation hazard involved in the use of tritium targets. Proc. of the IAEA Symp. on "Assessment of Airborne Radioactivity" Vienna, 501. 1967.
- 113 A. András, I. Fehér: Cs-137 burdens in the adult population of Budapest, *Kernenergie*, 12. 134. 1969.
- 114 Activities of the health physics department of the Central Research Institute for Physics (1971-1977) (compiled by L. Koblinger). KFKI, 85. 1978.
- 115 A KFKI Sugárvédelmi osztályának évi jelentései (1980 ... 1991) (belső anyag)
- 116 I. Fehér, S. Deme, A. András: Environmental monitoring system at the Paks Nuclear Power Station. *Acta Phys. Acad. Sci. Hung.*, 52. 373. 1981.
- 117 I. Fehér, S. Deme, A. András: Application of the new dose limitation system in the radiation protection monitoring programme of the nuclear power plant in Hungary. *Proceeding IAEA-SM-258/59*. 339. 1982.
- 118 A hatósági környezeti sugárvédelmi ellenőrző rendszer (HAKSER) évi jelentései (1983 ... 1992) (belső anyag)
- 119 I. Fehér: Experience in Hungary on the radiological consequences of the Chernobyl accident. *Environment International*, 14. 113. 1988.
- 120 A. András: Radiological consequences of the Chernobyl accident for Hungary, *J. Rad. Prot. Dosimetry*, 19. 239. 1987.
- 121 A. András, É. Belezna, I. Fehér: Investigation of internal dose received by the Hungarian population due to caesium radionuclides as a consequence of the Chernobyl accident. In the 7th International Congress of IRPA, Sidney, 1493. 1988.
- 122 A. András, É. Belezna, I. Fehér: Population doses of inhaled and ingested I-131 in Hungary as a result of the Chernobyl accident. *Proc. of the International Conference on Rad. Prot. in Nuclear Energy, IAEA-CN-51/68*, 375. IAEA, Vienna, 1988.
- 123 Gy. Lancsarics, I. Fehér, L. Sági, J. Pálfalvi: Transuranium elements in the hot particles emitted during the Chernobyl accident. *Radiation Protection Dosimetry*, 22. 111. 1988.

Budapest, MTA Izotópkutató Intézet
Érkezett: 1993. XI. 22.
Közlésre elfogadtuk: 1993. XI. 22.