

Bevezetés

A Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézetében (ATOMKI) működő Környezetanalitikai Laboratórium legfőbb feladatának környezetünk védelmének szolgálatát tekinti. Ehhez a munkához az úgynevezett környezeti izotópokat hívja segítségül.

A környezeti izotópok, alapértelmezés szerint, a hidrológiai, geológiai és biológiai rendszereket felépítő öt leggyakoribb elem, a H, C, N, O és S természetben előforduló izotópjai. Ezek egy része stabil (^1H - ^2H , ^{12}C - ^{13}C , ^{14}N - ^{15}N , ^{16}O - ^{18}O , ^{32}S - ^{34}S), mások radioaktívak (^3H , ^{14}C). A stabil izotópok alkalmazásának alapja az, hogy relatív tömegkülönbségük miatt fizikai, kémiai biológiai folyamatokban eltérően viselkednek. Két izotóp aránya bizonyos folyamatok során megváltozhat, a változásból a folyamat jellegére következtethetünk. A radioaktív izotópok jelentőségét az adja, hogy bomlásuk lehetővé teszi a természeti folyamatok időbeli nyomon követését. A technikai lehetőségek bővülésével az említett öt elem kivül egyre több elem természetben előforduló izotópjait sikerült bevonni a kutatásokba. Földtani és hidrológiai vizsgálatokban kiemelkedően fontos szerephez jutottak a nemesgázok (He, Ne, Ar, Kr és Xe). Egy részük, mint radioaktív bomlástermék a földtani kormeghatározást segíti (K/Ar módszer, (U+Th)/He módszer), a nemesgázok kémiai semlegességük miatt a földtani folyamatokban nyomjelzőként kezelhetők.

Több évtizedes fejlesztőmunka eredményeként az 1990-es évek közepén laboratóriumunkban a ^{14}C módszer és a könnyűelemek stabilizotópjainak vizsgálata képezte az izotóphidrológiai kutatások alapját. A következő lépés volt ezek kiegészítése a vizek tríciumtartalmának mérésével. Vízbázisok sérülékenység-vizsgálatánál ez gyakran 1 TU alatti tríciumkoncentrációk mérését követeli meg. Ennek technikai hátterét teremtette meg a laboratóriumunkban egy Fisons Instruments gyártmányú, VG-5400 típusú nemesgázmérő tömegspektrométer beszerzése 1994-ben. A berendezéssel meghatározható gázkeverékekben levő vagy vízben oldott nemesgázok koncentrációja, illetve izotóparányai.

Dolgozatomban bemutatom a doktori (PhD) munkám során bevezetett nemesgáz-mintavételi eljárásokat, a mintakezelő módszereket, illetve az eddig meghonosított alkalmazásokat és az elért eredményeket.

Célkitűzések

A doktori munkám célkitűzései a következőkben foglalhatók össze:

1. Metodikai célú fejlesztések:

- A víz tríciumkoncentrációjának a termelődő hélium alapján történő mérése során a minta tárolására hagyományosan üveglombikokat alkalmaznak. Ennek a tárolási módnak számos hátránya van: hosszú tárolási idő (kb. 6 hónap), $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ tárolási hőmérséklet, a törőzárral lezárt lombik felnyitáskor üvegtörmelék kerülhet a vákuumrendszerbe. Célul tűztem ki egy olyan tárolási módszer kidolgozását, amely a fenti problémákat kiküszöböli.
- Vízben oldott nemesgázok mintázására mintavevő és mérési eljárás fejlesztése.

2. Metodikai fejlesztéseim eredményeit az alábbi kutatási témákban szándékoztam kamatoztani:

- A kis tríciumkoncentrációk ($<1\text{ TU}$) mérésének jelentősége és szerepe a vízbázisok veszélyeztetettségének felismerésében. Vizsgálatok a kótaji vízbázis ivóvízkútjaiból származó vízmintákon.
- A tríciummérések szerepe és fontossága komplex hidrológiai elemzésekben. A püspökszilágyi radioaktív hulladékkezelő és -tároló alatti vízbázis hidrológiai elemzése.
- A csapadékvíz stabilizotóp-arányának és tríciumkoncentrációjának éves idősorából levonható hidrológiai és meteorológiai következtetések a Kelet-Magyarországon hullott csapadék vizsgálata alapján.
- Termálvizekben, illetve a mecseki uránbánya alatti aleurolit formációban lévő vízben oldott nemesgázok elemzése.
- Az atomerőmű primerkörében oldott nemesgázok szerepe a fűtőelem-tokozás meghibásodásának korai felismerése érdekében.
- A xenon és a kripton szobahőmérsékleten történő adszorpciója aktívszenen.

Kísérleti módszerek

A nemesgázmérő tömegspektrométer alkalmas különféle közegekből származó nemesgázok (hélium, neon, argon, kripton és xenon) koncentrációjának és izotóparányainak meghatározására.

A vízminták tríciumkoncentrációit a tríciumból termelődő hélium mennyiségének tömegspektrométeres mérésével határoztam meg. A módszer lépései a következők:

- A vízminták desztillálása az oldott sók eltávolítása végett.
- A desztillált vízminták kigázosítása, mely során az oldott gázok, így az oldott hélium is távozik a vízből.

- Néhány hét, általában két hónap tárolás után a termelődött ^3He mennyiségének tömegspektrométeres meghatározása a csúcsmagasság módszer alkalmazásával.

A tríciumméréshez üvegből készült desztillálóberendezést, diffúziós szivattyúval ellátott kigázosító rendszert és a tömegspektrométerhez csatlakozó gázbeeresztő és -tisztító rendszert használtam. A vízminták kigázosítására és a kigázosított minták tárolására fémlombikok használatát vezettem be a korábban alkalmazott üveglombikok helyett.

Felszín alatti vízben oldott nemesgázok vizsgálatánál kulcsfontosságú lépés a mintavétel, amelynek során el kell kerülni, hogy a minta levegővel érintkezzen. Ezt mindkét végén elszorítható rézcsővel oldottam meg. A laboratóriumban lévő kigázosító rendszeren felszabadítottam az oldott gázokat, majd getteres tisztítás és kriotechnikai szeparálás után megmértem a nemesgázok izotóparányait és koncentrációit.

Az atomerőművi nemesgázok vizsgálatánál a mintavételtől eltekintve ugyanazt a gáztisztítási és elválasztási módszert alkalmaztam, mint a felszín alatti vízben oldott gázok esetén. A primerköri gázok mintázásához speciális mintavevő egységet használtam, mellyel mindkét végén leforrasztható üvegampullába lehet összegyűjteni a vizsgálandó gázt.

Eredmények

Doktori dolgozatomban a nemesgáz-tömegspektrometria alkalmazásainak területén elért eredményeimről számoltam be, melyek az alábbi pontokban foglalhatók össze (az egyes tézisek után feltüntettem a *Közlemények* fejezetben található publikációim sorszámát):

1. A környezeti vízminták tríciumtartalmának meghatározására meghonosítottam a $T/{}^3\text{He}$ módszert az alábbi fejlesztésekkel. A módszer előnye, hogy egy kigázosított vízmintában adott tárolási idő alatt a trícium bomlásából keletkező hélium mennyiségét megmérve igen kis (<1 TU) tríciumkoncentrációk határozhatók meg.
 - Az üveglombikokkal kapcsolatban felmerülő problémák kiküszöbölésére fémlombikok használatát vezettem be. Mérésekkel bizonyítottam a fémlombik használatának előnyeit. A fémlombikok többször használatos mintatartó edények, melyek alkalmazásával háromliternyi vízminta mérése lehetséges, ami által a tárolási idő kevesebb, mint a harmadára csökkenhet.

- Kiszámoltam a módszer pontosságát (2-5% az 1 TU tríciumot tartalmazó vízminta esetén) és detektálási határát (3 ± 1 mTU). Igazoltam, hogy az általam használt módszer alkalmazásakor mind a bizonytalanság, mind pedig a detektálási határ alacsonyabb, mint más elterjedt módszerek esetén. A reprodukálhatóságot és a standardizálhatóságot méréseimmel bizonyítottam.

Munkám eredményeként jelenleg Magyarországon az ATOMKI-ban végezhető a legérzékenyebb tríciumkoncentráció-mérés. [1]

2. A kis trícium aktivitások (<1 TU) mérésének jelentőségét és szerepét a vízbázisok veszélyeztetettségének felismerésében a kótaji vízbázis példáján mutattam be. A vizsgálataim során kimutattam, hogy egy 163 m mély ivóvízkút túltermelése valószínűsíthető, fennállhat három másik kút vízadó rétegének veszélyeztetettsége, míg a többi kút vizének frissebb, fiatal vízzel való szennyezettsége kizárható. [2]
3. A püspökszilágyi radioaktív hulladék-kezelő és -tároló alatti vízbázis példáján szemléltettem a tríciummérések szerepét és fontosságát komplex hidrológiai elemzésekben. Kimutattam, hogy a némedi oldalon lévő idős víztartó felé lassú és kis mértékű a csapadékvíz beszivárgása. A patak völgyekben található sekély kutak csapadékvízzel keveredett vizet tartalmaznak. Megállapítottam, hogy az esetlegesen kiszabaduló radioaktív szennyeződés a talajvízzel a domb szilágyi oldala felé haladhat, a Némedi-patak irányában nem valószínű az áramlás. A telephelyen lévő kutak némelyikében és a szilágyi oldal felső részén lévő kutakban kimutattam kis mennyiségű antropogén eredetű tríciumot, mely azonban nem jutott el a Szilágyi-patakhoz. Méréseim szerint a környéken hulló csapadék a hulladéktárolóból származó tríciummal nem szennyezett, tríciumtartalma hasonló a Magyarországon szokásos értékekhez. [3],[4], [5]
4. Felvettem a 2001-es év csapadékvizeinek stabilizotóp és trícium idősorát. Hidrometeorológiai magyarázatot adtam az esővíz tríciumkoncentrációjában és stabilizotóp-arányaiban mutatkozó kisebb-nagyobb változásokra. Mindhárom érték (T, $\delta^{18}\text{O}$, δD) mutat szezonális változást, a tríciumértékek éves menetében jól felismerhető a nyári maximumot mutató szinuszgörbe. Az esővízben lévő trícium mennyisége függ az időjárási helyzettől és a csapadékmennyiségtől, mely paraméterek alapján magyarázatot adtam a tríciumkoncentrációk rövidtávú változásaira. A csapadékban lévő éves tríciumátlag 2001-ben 10,4 TU

volt, ami már közel áll a nukleáris ipar megjelenése előtti természetes háttérhez. A stabilizotóp-arányok hasonlóak a Közép-Európára jellemző értékekhez: a $\delta^{18}\text{O}$ éves szinten átlagosan $-7,6\text{‰}$, a δD pedig $-52,8\text{‰}$ volt. [6]

5. Mintavételi eljárást vezettem be, és mérési eljárást dolgoztam ki felszín alatti vízben oldott nemesgázok vizsgálatához. A rézcsöves mintavevő alkalmazásával lehetővé vált mind az öt nemesgáz izotóparányának és koncentrációjának a felszín alatti viszonyokat reprezentáló mérése. [2]
6. Alkalmazhatóvá tettem az atomerőmű primerköri hőhordozójában oldott nemesgázok kivonására épített mintavevőt rutinszerű mintázásokhoz. [8],[9]
7. A paksi atomerőmű nagy aktivitású radioaktív hulladékainak végleges elhelyezésére szolgáló telephely kutatásaihoz csatlakozó izotóphidrológiai vizsgálatok során megállapítottam, hogy az uránércet tartalmazó kőzet pórúsvízrendszere szoros kapcsolatban áll az aleurolit formáció egy részével. A hélium- és az argonkoncentrációk alapján el tudtam különíteni egy négy mintából álló csoportot, amelyben a vizek jelentékeny radioargon-tartalommal rendelkeznek, és egy kivétellel relatíve kevés bennük a hélium, továbbá fiatal, tríciumos vízzel "szennyezettek". A xenon- és a kriptonizotópokra kapott eredmények megerősítették azt az elképzelést, hogy az uránérc és az aleurolit vízrendszere között létezik kapcsolat. Mindezekből megállapítható, hogy hulladéktárolás céljára az aleurolitba fűrt alfa-vágatnak az a része a legalkalmasabb, ahonnan a D5- és D6-jelű minták származnak, mivel ez a terület alig áll összekötetésben az uránbányászati tárnákkal. [2],[7]
8. A termálvizek vizsgálata során a vizekben jelentős mennyiségű oldott héliumot találtam, melyek alapján hélium korokat határoztam meg. Megállapítottam, hogy nagyon idős vizekről van szó, a vizekre számított korok 44 ezer évtől 3 millió évig terjednek. A radiokarbon-mérések szerint ezek a vizek több tízezer évesek, ami látszólag ellentmondásban van a hélium tartalom alapján becsült korokkal. Az ellentmondás feloldható, mivel a radiokarbon kor egy átlagos vízkor, amiben benne foglaltatik az, hogy a vízminta különböző korú víztömegek keverékéből származik, míg a héliumkor egy maximumkort ad. A vizsgált termálkutakban lévő víz tehát akár több millió éves is lehet.

9. Hasadásból eredő xenonizotópokat mutattam ki a paksi atomerőmű 3-as blokkjának primerköri hőhordozójában. A hasadási termékek a fűtőelem-tokozás sérülése miatt juthattak ki a primerköri vízbe. A mérési adatok alapján megállapítottam, – figyelembe véve a kiértékelési módszerek korlátait – hogy a sérült fűtőelemeket nem később, mint 1999 nyarán kezdték energiatermelésre használni. Mivel a fűtőelemek három évet töltenek a reaktorban, a 2002 augusztusában esedékessé vált átrakás során a sérült fűtőelemek valószínűleg kikerültek a 3-as blokk reaktorából. [8],[9],[10].

10. Együttműködésben a Zrínyi Miklós Nemzetvédelmi Egyetem munkatársaival meghatároztam három különböző típusú aktívszén esetén a xenon és a kripton szobahőmérsékleten történő dinamikus adszorpciójának koefficiensét. Méréseimmel kiderítettem, hogy az aktívszén gázvisszatartó képessége szempontjából fontos paraméter a szén nedvességtartalma, a fajlagos felület és a pórusméret-eloszlás. Vizsgálataimmal a három típus közül kiválasztottam a legjobbnak adódott "orosz-új" típusú aktívszén fajtát, amellyel az atomerőmű nemesgázszűrőjében üzemi terhelés mellett a kripton 75 óráig, a xenont pedig 1374 óráig lehet visszatartani.

Introduction

The mission of the Laboratory of Environmental Studies in the Institute of Nuclear Research of the Hungarian Academy of Sciences is to work for the protection of the environment. The environmental isotopes are used for this work. The natural isotopes of the most common five elements (H, C, N, O and S), which build the hydrological, geological and biological systems, are considered as environmental isotopes. Some of these isotopes are stable (for example: ^1H - ^2H , ^{12}C - ^{13}C , ^{14}N - ^{15}N , ^{16}O - ^{18}O , ^{32}S - ^{34}S), others are radioactive (^3H , ^{14}C). The stable isotopes serve as tracers of water, carbon, nutrient and solute cycling. As they are also light elements, the relative mass differences between their isotopes are large, imparting measurable fractionations during physical and chemical reactions. Radioactive environmental isotopes are also important in hydrogeology. From their decay we have a measure of time and so environmental radionuclides such as ^{14}C and ^3H can be used to estimate the age or circulation of groundwater. The family of environmental isotopes is growing as new methods allow the routine analysis of additional isotopes. The noble gas isotopes have a special role in geological and hydrological investigations. Some of them as decay products help the determination of geological age (K/Ar method, (U+Th)/He method), and others are tracers in geological and hydrological processes due to their chemical neutrality.

As a result of a few decades of development the radiocarbon and stable isotope studies made the base of the research in our laboratory since the middle of 90's. The next step was to complete these studies with the measurement of tritium content of environmental water samples. The investigation of aquifer vulnerability often requires the detection of tritium concentration less than 1 TU. Its technical background was created in 1994 by purchasing a VG-5400 type noble gas mass spectrometer (Fisons Instruments). Concentrations and isotope ratios of noble gases in gas mixtures and solids or dissolved in water can be determined with this equipment.

My dissertation presents the noble gas sampling methods and treatments introduced during the PhD work, the applications and the results.

Aims

The aims of this work can be summarized in the following:

1. Development of the methodology:
 - During the measurement of tritium concentration of water by ^3He ingrowth method glass bulbs are generally used for storage the degassed

water sample. To get around the problems with glass bulbs I wanted to develop a new degassing and storage method.

- I intended to present the equipment for sampling noble gases dissolved in water and the pre-treatment procedure.
- 2. Applications of the developments in the next research topics:
 - The role and significance of low-level tritium measurements (<1 TU) in the recognition of aquifer vulnerability. Studies of Kótaj aquifer in Eastern Hungary.
 - The role and importance of tritium measurements in complex hydrological investigations. Hydrological analysis of aquifer under the Püspökszilágy Radioactive Waste Treatment and Disposal Facility.
 - The role and importance of tritium measurements in hydrological and meteorological studies. Stable isotope ratio and tritium time series of precipitation in Eastern Hungary.
 - Analyses of dissolved noble gases in thermal waters and in pore waters of the aleurolite facies under the uranium mine in Mecsek Mountains.
 - Early detection of fuel element leakage via noble gas isotopes dissolved in the primary water of a nuclear power plant.
 - Determination of the adsorption coefficient of xenon and krypton on active charcoal at room temperature.

Methods

Concentrations and stable isotope ratios of noble gases (helium, neon, argon, krypton and xenon) from several agents can be measured by noble gas mass spectrometer. Tritium concentrations in water samples were determined with the mass spectrometric measurement of ^3He produced by the tritium decay. The method consists of three main steps:

- Distillation of water samples to extract the dissolved salts.
- Degassing of the distilled samples to remove the dissolved gases, among them the helium.
- Measurement of the amount of ^3He accumulated during a few-week, generally a two-month storage period.

For the tritium measurement I used glass distillation system, gas extraction system equipped with diffusion pump, gas purification and separation system. I applied metal container instead of glass bulb for storage of water samples.

It is essential to avoid the air contamination during the sampling of noble gases dissolved in groundwater. I applied a copper tube pitched off at the ends for sampling. In the laboratory the gases were released in a gas extraction

system, and were purified with vanadium-zirconium alloy and separated by cryo-technique methods.

In the case of noble gases from primary water of nuclear power plants a special sampler was used, which collected the gas dissolved in the primary water into a glass ampoule. The glass ampoules were closed by flame sealing.

Results

New results achieved by the application of noble gas mass spectrometry (the numbers in the brackets represent the publications that refer to each thesis, see chapter of *Publications*):

1. I have initiated the measurement of low-level tritium concentration in water samples by helium-3 ingrowth method in our institute. To get around the problems with the glass bulbs I have introduced the application of metal containers equipped with metal valve. I have demonstrated the advantage of metal containers in contrast with glass bulbs. I have confirmed the reproducibility of the tritium measurement, and I have proved that the accuracy was higher and the detection limit was lower using my method than in case of other applied techniques. The metal containers are multiple use vessels, during their application three litres of water can be measured, thus the storage time can be reduced to two months or less. I have determined the accuracy of the measurement, which is 2-5 % in case of 1 TU. The detection limit is 0.003 ± 0.001 TU. [1]
2. I have demonstrated the role and the significance of the low-level (<1 TU) tritium measurement in investigations of aquifer vulnerability on the example of Kótaj aquifer. I have observed that a 163 m deep well contained too much tritium (0.23 ± 0.07 TU) compared to the other wells, which indicated that the well was overexploited. The overexploitation of three other wells can not be excluded, while in case of other wells the contamination of the aquifer with fresh, young water can be excluded. [2],[11]
3. I have demonstrated the role and the importance of tritium measurement in complex hydrological analyses on the example of aquifer under Püspökszilággy Radioactive Waste Treatment and Disposal Facility. The recharge to the aquifer in the Némedi side of the

hill is very limited. The shallow wells at the valley of Némedi and the Szilágyi stream contain water mixed with precipitation. I have assessed that the potential radioactive contamination could move rather toward the Szilágyi stream than toward Némedi stream. I have found that a few wells at the facility and in the upper part of the Szilágyi side contained a small amount of anthropogenic tritium, however it did not reach the Szilágyi stream. The rainwater in the area was not contaminated with anthropogenic tritium, its tritium content is the same as in other parts of Hungary. [3],[4],[5]

4. I have taken the time series of the stable isotope ratios and tritium in precipitation in 2001. I have provided hydro-meteorological explanations of the changes in the tritium concentration and stable isotope ratios of rainwater and snow. The T, δD and $\delta^{18}O$ values followed the seasonal change, and the sinus curve with a summer peak could be observed in the yearly course of tritium. The tritium amount of the precipitation depends on the weather situations as well as the quantity of the precipitation. On the basis of these parameters I explained the short-term changes in tritium concentration. I have found that the average tritium content of the precipitation in 2001 was 10.4 TU, which is near to the natural background. The stable isotope ratios were the same as the data available for Central Europe: the average $\delta^{18}O$ value was -7.6 ‰, and the δD -52.8 ‰. [6]
5. I have developed and introduced a sampling and measurement procedure to examine the dissolved noble gas isotopes in groundwater. The use of the copper tube sampler makes possible the study of the noble gases in subsurface relation. [2]
6. For sampling the dissolved gas content of the primary water of nuclear power plants I have introduced a semi-automatic sampling unit for routine sampling. [8], [9]
7. There is a national research program in Hungary to establish an eventual high-level radioactive waste repository of the burned-out fuel elements of the nuclear power plant of Paks. In the framework of this project I have found that the rock containing uranium ore was in connection with a part of the aleurolite formation under the uranium mine. On the basis of helium and argon data I could separate a group (four samples), in which the water had significant radio-argon content

and relative low amount of helium. Furthermore, the water in this group were mixed with young water including tritium. The xenon and krypton data also confirmed the conception that there was a connection between the water system of uranium mine and aleurolite formation. On the basis of these observations I have concluded that that part of the alpha-tunnel drilled to the aleurolite formation, where the D5- and D6-sampling points were located, were the most suitable for waste repository, since this area hardly was in connection with the uranium mine-shafts. [2],[7]

8. By analyses of dissolved noble gases in thermal water I could declare that these water samples were very old. I have found considerable amount of helium, by which I have determined helium-ages. The helium-ages varied from 44,000 to 3 million years, which were virtually inconsistent with the several 10,000 years radiocarbon ages. The reason of this inconsistency is that the radiocarbon age is an average age of a water body, which may be a mixture of waters of different ages, while the helium content shows a maximum age. Thus, the thermal water samples could be several million years old.
9. I have detected fission origin xenon isotopes in the heat carrier of the reactor-3 of the nuclear power plant of Paks, which indicated the damage of some fuel elements. On the basis of xenon isotope ratio data I have concluded - taking into account the limits of the evaluation - that the damaged fuel element was installed on summer in 1999, therefore in the time of the refuelling procedure in August 2002 it was removed from the reactor. [8],[9],[10]
10. In collaboration with colleagues from the Miklós Zrínyi University of National Defence I have determined the dynamic adsorption coefficient of three different types of activated charcoal for xenon and krypton at room temperature. I have found that the gas retention ability of the charcoal depends on the moisture of the charcoal, the specific surface and the distribution of the pore size. I have found the "orosz-új" ("Russian-new") type charcoal to be the best retaining the krypton for 75 hours, and the xenon for 1374 hours in the noble gas filter of the nuclear power plant under operating conditions.

Közlemények / Publications

Az értekezés témakörében megjelent közlemények:

1. **Palcsu L.**, Szántó Zs., Svingor É., Molnár M., Futó I.: *Metal container instead of glass bulb in tritium measurement by ^3He ingrowth method*, Fusion Science and Technology, Vol 41. No. 3., Part 2. (2002) 532-535.
2. Futó I., Molnár M., **Palcsu L.**, Svingor É., Szántó Zs.: *Application of a noble gas mass spectrometric system in environmental studies*, Vacuum, Vol. 61, (2001) 441-445.
3. *A Püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló biztonsági elemzéséhez szükséges vizsgálatok elvégzése*, Kutatási zárójelentés III. kötet 10. fejezet Hidrogeológia, (2001)
4. *A Püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló biztonsági elemzéséhez szükséges vizsgálatok elvégzése*, Kutatási zárójelentés IV. kötet 11. fejezet Geohidrológia, (2001)
5. Szántó Zs., Svingor É., Futó I., **Palcsu L.**, Molnár M.: *Chemical and isotopic studies around a near surface radioactive waste disposal*. Isotopes in Environmental and Health Studies. (in press)
6. **Palcsu L.**, Svingor É., Szántó Zs., Molnár M., Futó I., Major Z., Károssy Cs.: *Isotopic composition of precipitation in Hungary*, Journal of Hydrology (submitted)
7. Hertelendi E., Futó I., **Palcsu L.**, Molnár M.: *Isotope geochemistry of headspace gases of groundwater samples from the aleurolit formation near Mecsek mountains, Hungary*, Proceedings of 5th International Conference on Rare Gas Geochemistry. Debrecen, Magyarország, 1999. augusztus 30. - szeptember 3., 81-88.
8. **Palcsu L.**, Molnár M., Szántó Zs., Svingor É., Futó I., Pintér T.: *Dissolved stable noble gas measurements from primary water of Paks NPP*, International Conference, Nuclear Energy in Central Europe. Portorož,

Slovenia, 10-13 Sept., 2001. Proceedings, CD-ROM. Eds: I. Jencic, et al. Ljubljana, Nuclear Society of Slovenia (2001) 612.

9. **Palcsu L.**, Pintér T., Molnár M., Mogyorósi M., Szántó Zs., Svingor É., Futó I.: *Dissolved stable noble gas measurements from primary water of Paks NPP*, Proceedings of the 5th International Seminar on Primary and Secondary Side Water Chemistry of Nuclear Power Plants. Eger, Hungary, 17-20 Sept., 2001 (2001)
10. **Palcsu L.**, Szántó Zs., Svingor É., Molnár M., Futó I., Major Z.: *Detection of leakage of fuel elements by xenon isotope ratios in primary water of Paks NPP*, International Conference, Nuclear Energy for New Europe 2002. Kranjska Gora, Slovenia, 9-12 Sept., 2002. Proceedings, CD-ROM. Eds: I. Jencic, et al. Ljubljana, Nuclear Society of Slovenia (2002) 0702. (in press)
11. Szántó Zs., **Palcsu L.**, Futó I., Molnár M., Svingor É.: *A vízbázisvédelem jelentősége, megvalósításának lépései - Vízbázis sérülékenység vizsgálati módszerek*, Proceedings, Magyar Földrajzi Konferencia, Szeged 2001. október 25-27., (CD-ROM)

Egyéb közlemények:

12. Szántó Zs., Svingor É., Molnár M., **Palcsu L.**, Futó I.: *Approach to assessing the radiological impact of the Püspökszilágy RWTDF*, Proceedings of the International Conference on Issues and Trends in Radioactive Waste Management, Vienna, 9-13 December 2002. (CD-ROM) (in press)
13. Molnár M., **Palcsu L.**, Svingor É., Szántó Zs., Futó I., Ormai P.: *Gas formation in drum waste packages of Paks NPP*, Proceedings of International Conference, Nuclear Energy in Central Europe 2000. Bled, Szlovenia, 11-14 September 2000. (CD-ROM)
14. Molnár M., **Palcsu L.**, Svingor É., Szántó Zs., Futó I., Ormai P.: *Composition and activity variations in bulk gas of drum waste packages of Paks NPP*, Proceedings of International Conference, Nuclear Energy in Central Europe 2001. Portorož, Slovenia, 10-13 September 2001. (CD-ROM)

15. Szántó Zs., Svingor É., **Palcsu L.**, Molnár M., Futó I.: *Near-field issues - Investigation of gas generation in situ*, Proceedings of International Conference on Radioactive Waste from Non-power Applications, Malta, 5-9 November 2001. (in press)
16. Szántó Zs., Szücs Z., Svingor É., Molnár M., **Palcsu L.**, Futó I., Vajda N.; Molnár Zs., Kabai É.: *Determination of ^{129}I in low level radioactive waste by two different methods*,. Proceedings of International Conference, Nuclear Energy in Central Europe 2001. Portorož, Slovenia, 10-13 September 2001. (CD-ROM)
17. Szántó Zs., Svingor É., Molnár M., **Palcsu L.**, Futó I.: *Application of carbon-isotope analysis in food technology*, Studia Universitatis Babeş-Bolyai, Physica, Special Issue 2001, Vol. 1. p. 124-129.
18. Molnár M., **Palcsu L.**, Pintér T., Patek G., Svingor É., Szántó Zs., Futó I.: *Application of a portable QMS in Paks NPP for control of steam generator chemical cleaning*, Journal of Mass Spectrometry, Vol. 37/2, (2002) 230-231.
19. Szántó Zs., Svingor É., Molnár M., **Palcsu L.**, Futó I., Szücs Z.: *Diffusion of ^3H , ^{99}Tc , ^{125}I , ^{36}Cl and ^{85}Sr in granite, concrete and bentonite*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 252, No. 1. (2002) 133-138.
20. Molnár M., **Palcsu L.**, Svingor É., Szántó Zs., Futó I.: *Headspace gas analysis of closed radioactive waste vaults in a near surface disposal facility of Hungary*, Proceedings of International Conference, Nuclear Energy for New Europe 2002. Kranjska Gora, Slovenia, 9-12 September 2002. (CD-ROM) (in press)
21. **Palcsu L.**, Molnár M., Szántó Zs., Svingor É., Futó I., Major Z.: *Nemesgáz-analitika a primerköri vízben oldott gázok vizsgálatában*, Proceedings Magyar Nukleáris Technika Szimpózium 2002. Budapest, Magyarország, 2002. október 3-4. (in press)
22. Molnár M., **Palcsu L.**, Svingor É., Szántó Zs., Futó I.: *Kis- és közepes aktivitású radioaktív hulladékokban képződő gázok vizsgálatai*, Proceedings Magyar Nukleáris Technika Szimpózium 2002. Budapest, Magyarország, 2002. október 3-4. (in press)

23. Szántó Zs., Svingor É., Molnár M., **Palcsu L.**, Futó I., *A püspökszilágyi RHFT monitoring vizsgálata*, Proceedings Magyar Nukleáris Technika Szimpózium 2002. Budapest, Magyarország, 2002. október 3-4. (in press)