

# Nagyaktivitású radioaktív hulladéktárolásra alkalmas boroszilikát üvegek előállítása, szerkezetvizsgálata, optimalizálása

## Szakmai zárójelentés

### 1. Bevezetés, célkitűzések

A radioaktív hulladékok végső elhelyezése a jelen és jövő, létező és egyre sürgetőbb környezeti problémája. Nem képzelhető el az atomenergia, a nukleáris medicina és a nukleáris ipar más ágazatai által nyújtott előnyök igénybevétele anélkül, hogy ne tudnánk választ adni a hulladék végleges elhelyezésének kérdésére.

Mostanra általánosan elfogadott műszaki megoldás az, hogy a nagyaktivitási radioaktív hulladékot (továbbiakban: hulladékot) elhelyezik mélyen fekvő geológiai tárolóhelyeken, elszigetelik a bioszférától. A zárt és nyílt üzemanyagciklus esetén is ez a műszaki megoldás tűnik elfogadhatónak és biztonságosnak. A mélygeológiai tárolás kialakítása többszörös védelmi rendszer megépítésével valósul meg. Az itt bemutatott munka a mérnöki gétek rendszeréhez tartozó, hulladékok kondicionálásával foglalkozik. A kondicionálás célja a hulladék stabilizálása/szilárdítása, valamint a hulladékban található radioaktív szennyezők immobilizálása. A folyamat során a hulladékot az erre a célra kifejlesztett kötőanyagba ágyazzák, stabil hulladékmátrixot képezve. A nagy aktivitású hulladékokra az amorf rendszerek a legalkalmasabbak.

A kondicionálási eljárások során figyelembe kell venni a gazdaságos előállítási szempontokat és követelmény a hulladék stabil, biztonságos tárolása és tárolásra való előkészítése. További cél, hogy a kondicionáló anyag (amit mátrix-anyagnak hívunk) aránya minél kisebb legyen a végleges hulladékban, az előállítás legyen ipari méretben gazdaságos, miközben stabil beépülés valósuljon meg. Javítani kell tehát a hulladék/mátrix arányt, valamint el kell érni azt, hogy a legkülönbözőbb típusú hulladék befogadására legyen alkalmas a mátrix összetétel, jó kémiai ellenállóképességgel rendelkezzen (azaz őrizze meg stabilitását a hulladék jelenlétében is), szerkezetük és a tulajdonságaik is csak olyan kis mértékben változzanak, amely nem befolyásolja a stabilitást.

Az eddig ismert amorf összetételek nem tartalmaznak minden szükséges adatot (több esetben iparjogvédelmi előírás miatt), amelynek segítségével szükség esetén kondicionálni lehet a hulladékot.

A projekt célja nagy-aktivitású radioaktív hulladékok biztonságos tárolására alkalmas új matrix-üvegek előállítása, atomi szerkezetük tudományos igényű meghatározása. Az üveg üreges szerkezetének köszönhetően, az aktív elemek bekötődnek a hálószerkezetbe, az így oldott radioaktív elemek/izotópok a bioszférától elszigetelve stabilizálódnak. A projekt keretében először egy kis méretű radiokémiai labort létesítettem, ahol gyorshűtéses technikával elő tudom állítani az üvegmintákat. Erre a célra alkalmas a 10 MW-os Budapesti Kutatóreaktornak helyet adó épület, ahol a szerkezetmeghatározásra alkalmas PSD neutrondiffraktométer is működik. Az épület megfelel a radioaktív anyagokra vonatkozó biztonsági előírásoknak. Az üvegek szerkezetvizsgálatát neutron- és röntgendiffrakciós

mérésekkel valamint NMR spektroszkópiás vizsgálatokkal határoztam meg. A diffrakciós adatsorokból a fordított Monte Carlo szimulációs program alkalmazásával meghatároztam a rövid- és középtávú atomi rendet jellemző parciális szerkezeti függvényeket, azokból a parciális atomi távolságokat, koordinációs környezeteket, a gyűrűeloszlást, a kötések jellegét, amelyekre az irodalomban igen csekély adat áll rendelkezésre. A boroszilikát- és a radioaktív elemeket tároló üvegek szerkezetének megismerése új információval szolgál mind a tudományos szakterület, mind a nukleáris ipar számára. Gazdaságos előállítása megoldást jelenthet a nagy-aktivitású hulladékok tárolására.

## 2. Minta előállítási környezet kialakítása

A projekt keretében egy radiokémiai laboratóriumot tudtam berendezni, amelyben, a boroszilikát üvegek valamint a különböző radionuklidokat tartalmazó üvegek előállítását végeztem. A minták előállítását a komponens oxidok bemérésével kezdtem, amelyre a projekt keretében vásárolt AUW-D félmikro Shimadzu mérleget használtam. Az üvegmintákat, a kimért oxidok homogenizálását követően magas hőmérsékletű kemencében olvasztással, majd ezt követően gyorsított technikaival állítottam elő. Ennek alapfeltétele volt, egy mintakészítésre alkalmas magas hőmérsékletű kályha beszerzése és üzembe helyezése.

A projekt egyik legfontosabb része a radiokémiai labor kialakítása, a magas hőmérsékletű kályha beszerzése és beüzemelése volt. Erre a célra alkalmas laboratórium található a csillebérci Kutatóreaktor épületének második emeletén. Az elektromos felfűtésű, magas hőmérsékletű kályhát a *LAC-Art of heating* cseh cégtől vásároltuk. A kályhát a műszaki kollégák segítségével telepítettük. A kályha maximális hőmérséklete 1700°C, belső térfogata 10 l, belső tér paraméterei: 200mm(sz) x 200mm(m) x 250mm(mély).

Az 1. Ábra a kályhát és a félmikro mérleget mutatja meg.



1. Ábra. Magas hőmérsékletű LAC kályha és Shimadzu félmikro mérleg.

A biztonsági előírásoknak megfelelően védőfelszerelést szereztem be, amely feltétele volt a munkavégzésnek. A védőöltözethez tartozik: hőálló kesztyű (könyékig erős, alumínizált aramid anyagból készült kesztyű), hőálló kötény (nyaktól lefele térd hosszúságig védi a mellkast, anyaga szintén alumínizált aramid) valamint hegesztő lencsét tartalmazó védőszemüveg (1000°C fok fölött a kályhában lévő teljes térnek vörös izzása van, amely károsíthatja a szem fényérzékelő sejtjeit). A védőeszközök eleget tesznek a 18/2008.(XII.3.)SZMM rendelet

szerinti egyéni védőeszközökre vonatkozó követelményeknek, a védőeszközök MTA EK megfelelőségi tanúsítvánnyal rendelkeznek.

A magas hőmérsékletű kályhát egy hagyományos kémiai laboratóriumban üzemeltük be. A munkavégzés másik feltétele volt, hogy a kályha és a munkavégzés környezete is a magas hőmérsékletű munkavégzésre megfelelően biztonságos legyen. A laboratóriumban éghető munkaasztal és éghető anyagú padozat van ezért az égésveszély elkerülésére ezeket a felületeket nem éghető anyaggal vontuk be, a munkaasztal és a padló alumíniumlemez burkolatot kaptott.

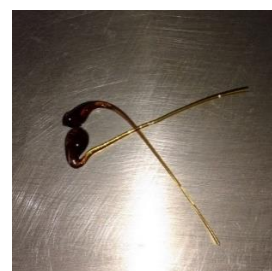
A biztonsági feltételek teljesülésével megkezdtem a kísérleti munkát. Az eddigi üvegolvasztási tapasztalatokra hagyatkozva meghatározott koncepció szerint dolgoztam. A legfontosabb, hogy az új kályha műszaki paramétereit figyelembe véve meghatározzam az olvasztási hőmérséklet/idő arányokat, kitapasztaljam az olvasztási folyamat lépéseit, megismerjem az olvasztási fokozatok sajátosságait. Az olvasztási lépések és idő behatárolásához meglévő mintákat használtam, meghatározott összetételű és mennyiségű minta újraolvasztását végeztem el. Ez kb. 12 olvasztást jelent, amelynek során kialakult az olvasztási protokoll. Ennek alapján kb. 500°C-on a mintát a kályhába helyezem, felfűtöm kb. 1450°C-ra, itt tartom 2-2,5 órát, majd a hőmérsékletet lecsökkentem 1250°C-ra, ezt követően kb. 1200°C-on kiöntöm a mintát. A minta olvasztására platinatégelyt használtam, ez több szempontból is fontos, hiszen a magas hőmérsékletet jól bírja, az esetlegesen bent ragadó üveget jól ki lehet tisztítani hidrogén-fluorid (HF) savval, amely az egyik legerősebb sav és oldja az üveget, de nem lép reakcióba a platinával. A beállított maximum hőmérsékleten 2-2,5 órát tartottam, hogy homogén üvegeket kapjak, vagyis így átlátszó, csepp-, szál- és buborékmentes mintákat tudtam előállítani. A minta kb. 700-800°C-on kezd lágyulni majd 1100-1400°C-on olvad és olvadás után a beállított maximum hőmérsékleten homogenizálódik. Ennek az időnek a megadását, az összetevők esetünkben az oxidok-kémiai tulajdonságainak és az összetevők koncentrációjának a figyelembevételével tudtam optimálisan meghatározni. A 2. Ábrán különböző összetételű üvegeket mutatok be a kiöntést követően.



Mátrix-20U10Ce



Mátrix-30Eu



Mátrix-40U



Mátrix-20U10Nd



Mátrix-30Nd



Mátrix-U sorozat

2. Ábra. Olvasztott üveg minták.

Az olvasztások során megfigyeltem, hogy a többkomponensű minták olvadásához, homogenizálódásához, több időre van szükség mint a kevesebb összetevőt tartalmazó mintáknál.

Neutron- és röntgendiffrakciós módszereket alkalmaztam az üvegminták szerkezetvizsgálatára. *Neutrodiffrakciós* méréseimet a Budapesti Kutatóreaktor 9. számú termikus, vízszintes tangenciális csatornájánál működő PSD helyzetérzékeny neutrodiffraktométeren végeztem. Pályázati rendszerben elnyert nyaláb-ido keretében kiegészítő méréseket végeztem a Saclay-i kutatóreaktornál üzemelő 7C2 berendezésen. Utóbbi berendezés lehetővé tette a mérés kiterjesztését nagy  $Q$ -tartományig, jellemzően 20-26  $\text{\AA}^{-1}$ -ig. Ennek előnye, hogy a valós  $r$ -térben az atomi párkorrelációs függvények számításánál lényegesen jobb felbontást kapunk ( $\Delta r = \pi/Q_{max}$ ), ami pontosabb szerkezetmeghatározáshoz vezet.

A *röntgendiffrakciós* méréseket a Grenoble-i, ESRF szinkrotronnál működő ID22 röntgendiffraktométeren végeztem, 78,5 keV energián,  $Q=0,5-24 \text{\AA}^{-1}$  szórási tartományban mértem. A szinkrotronos mérések szintén pályázati rendszerben történtek. A vizsgált többkomponensű összetételek könnyű és nehéz atomokat egyaránt tartalmaznak, ezért indokolt volt a neutrodiffrakciós mérések mellett röntgendiffrakciós méréseket is végezni. A könnyű atomok környezetére (B, O, Si) a neutrodiffrakció ad pontosabb szerkezeti információt, míg a nehéz atomokra (Ba, Zr, U) a röntgendiffrakciós mérésből nyerhetünk több információt. Az adatok feldolgozásánál figyelembe vettem a háttér és abszorpciós korrekciókat. A kétfajta diffrakciós mérés együttes kiértékelését az RMC szimulációs programmal végeztem.

Egyszerű összetételek és több-komponensű minták esetén is, az egyes atompárokat jellemző  $g_{ij}(r)$  parciális párkorrelációs függvények meghatározásához a fordított Monte Carlo (RMC) módszert használtam, amely rendezetlen kondenzált rendszerek diffrakciós spektrumainak értelmezésére széles körben alkalmazott eljárás. A szerkezet jellemzéséhez elsősorban a parciális párkorrelációs függvényeket és a koordinációs számokat határoztam meg, valamint, egyszerűbb összetételeknél a kötési szögeloszlásokat és a lehetséges gyűrűeloszlásokat. *(A  $g_{ij}(r)$  parciális párkorrelációs függvény megmutatja, hogy egy  $i$  típusú részecskétől  $r$  távolságban a  $j$  típusú részecskék lokális sűrűsége hogyan aránylik az  $j$  típusú részecskék átlagos sűrűségéhez. A  $g_{ij}(r)$  függvények invariánsak az  $i \leftrightarrow j$  részecske cseréire nézve, hiszen két részecske közötti távolság azonos, a  $g_{ij}(r) = g_{ji}(r)$ ; a  $K.Sz.(CN)$ - koordinációs szám megadja, hogy egy  $i$  típusú atomot átlagosan hány  $j$  típusú atom vesz körül egy megadott távolság tartományban.)*

Több minta esetén sikerült *NMR spektroszkópiái* méréseket is elvégezni, amely hozzájárult a szerkezet meghatározásához, ez a mérés szintén pályázati rendszerben (CERIC) elnyert mérési idő szerint valósult meg. A mágneses magrezonancia spektroszkópia (NMR) egyike azon modern kémiai szerkezetvizsgálati módszereknek, amelyek roncsolás nélkül, a vizsgált anyag fizikai tulajdonságai alapján képesek információt nyújtani azok kémiai szerkezetéről. Az NMR spektrumból megállapítható, hogy egy atommag közelében hány darab és hányféle közeli szomszéd atom található.

A mintákat a ljubljani 600 MHz (MAGIC) NMR berendezésen mértem meg, ahol a  $^{11}\text{B}$  magokra fókuszáltam, hiszen ezek mágneses magrezonanciával mérhető izotópok. A 600 MHz-es mágneses tér alkalmazása során a B atomok szerkezeti környezetére kaptam információt.

### 3. Minta összetételek és szerkezeti vizsgálatok

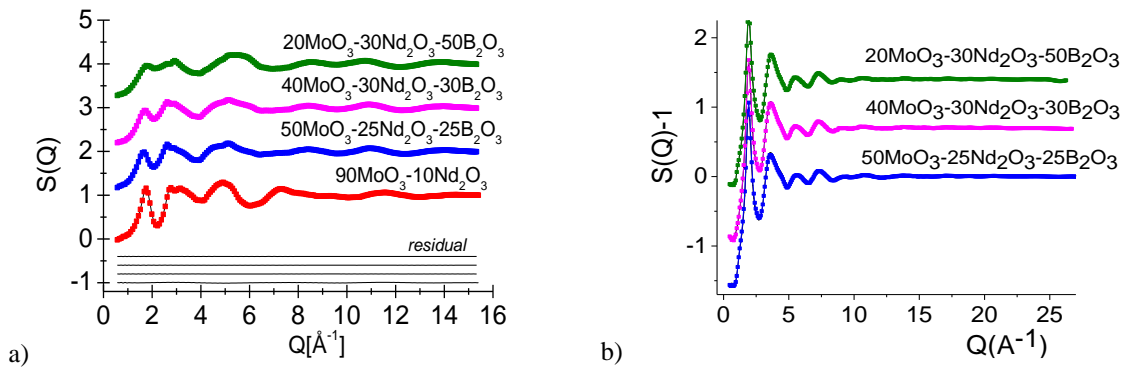
A tapasztalatok alapján, irodalmi adatokra támaszkodva két új üvegösszetétel-sorozatot állítottam elő és vizsgáltam, amelyek potenciális hulladék-kondicionáló anyagként alkalmazhatóak. Az egyik bizakodásra okot adó összetétel a Mo-tartalmú rendszerek, a másik, irodalomban is hivatkozott összetétel a boroszilikát üvegek.

#### 3.1. A Mo-tartalmú rendszerek vizsgálata

Több irodalmi adat is alátámasztotta, hogy a Mo-tartalmú üvegek alkalmasak lehetnek a nagy aktivitású hulladékok kondicionálására. Korábban nem vizsgáltuk ezt a lehetőséget, de mivel a kísérleti körülmények a rendelkezésünkre álltak ezért több Mo-alapú rendszert is megvizsgáltam. Feltételezés szerint a molibdén-ritkaföldfém típusú üvegek alapszerkezete, a nagyobb atomok hálózatosan kiépült rendszeréből áll, amelyben a hasonló nagyobb méretű aktinoidák stabilan megkötődhetnek. Célunk minden esetben, minden mintacsaládnál az egyszerű összetétellel rendelkező minták előállítását és vizsgálatát. Ezt a célt szem előtt tartva vizsgáltam több Mo-tartalmú összetételt, meghatározva az alapszerkezet felépítésében szerepet játszó alapegységek kialakulását és egymáshoz való kötődésének rendszerszerűségét. A vizsgált minták az alábbiak voltak:

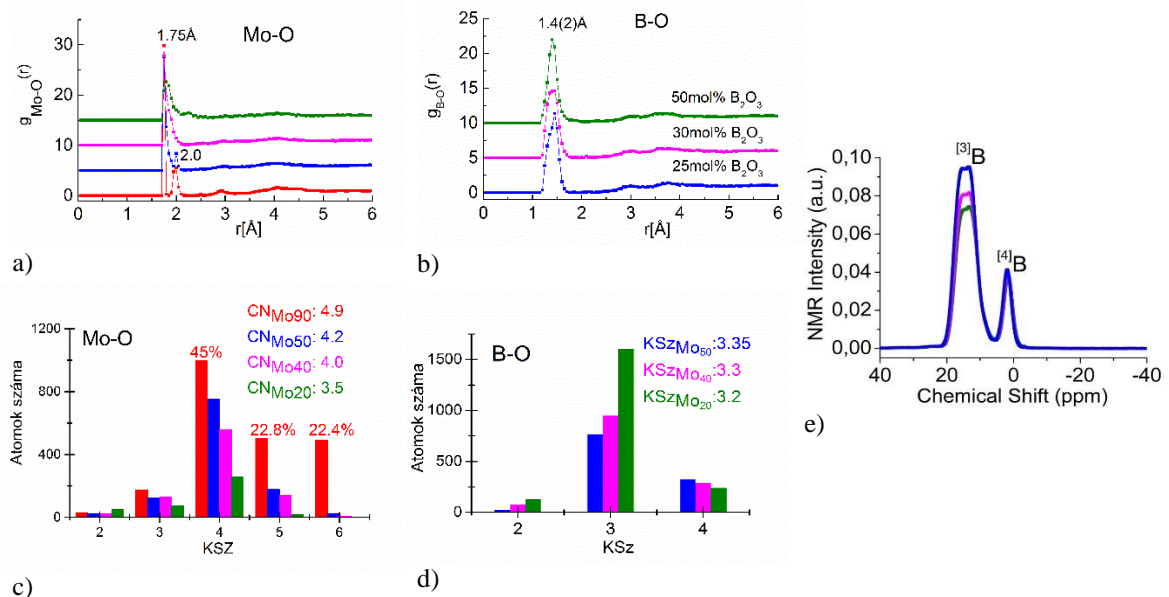
1. 90%Mo-10% Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>
2. 50%MoO<sub>3</sub>-25%Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-25%B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
40%MoO<sub>3</sub>-30%Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-30%B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
20%MoO<sub>3</sub>-30%Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-50%B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> - MoNdBO
3. 30%MoO<sub>3</sub>-50%ZnO-20%B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
20%MoO<sub>3</sub>-50%ZnO-30%B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
10%MoO<sub>3</sub>-50%ZnO-40%B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> - MoZnBO

A vizsgálatot a kétkomponensű 90%MoO<sub>3</sub>-10%Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mintával kezdtem, amelyhez B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> jól ismert üvegeképző oxidot adtam. A MoNdBO rendszer esetén az alapszerkezet kialakulására voltam kíváncsi illetve a szerkezetet felépítő egységek kialakulására és lehetséges kapcsolódási módjára. Vizsgáltam a Nd beépülését az üvegalkotó B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> oxid bevitelének függvényében, valamint az alapszerkezet módosulását a Mo koncentráció függvényében. A diffrakciós kísérleti mérések mellett NMR spektroszkópiás vizsgálatokat is végeztem. A diffrakciós szerkezeti függvények jellege alapján mintáink amorf szerkezetűek, amely szintén egy új eredmény, hiszen nem triviális, hogy a molibdén-ritkaföldfém-tartalmú oxidrendszereket amorf mintaként tudjuk előállítani (*Az  $S(Q)$ , szerkezeti függvény a szórt intenzitás eloszlásból számolt koherens, rugalmas szórás normált alakja, figyelembe véve a háttér, abszorpció és az adott mérőberendezésre jellemző egyéb korrekciós tényezőket.*). A 3. Ábra a neutron és röntgendiffrakciós RMC szimulációval illesztett szerkezeti függvényeket mutatja be.



3. Ábra. A MoNdBO mintákra a kísérleti és RMC szimulációval illesztett a) neutrondiffrakciós és b) röntgendiffrakciós szerkezeti függvények. A színes jel a kísérleti görbét jelzi, míg a fekete vonal az RMC-vel számolt szerkezeti függvényt.

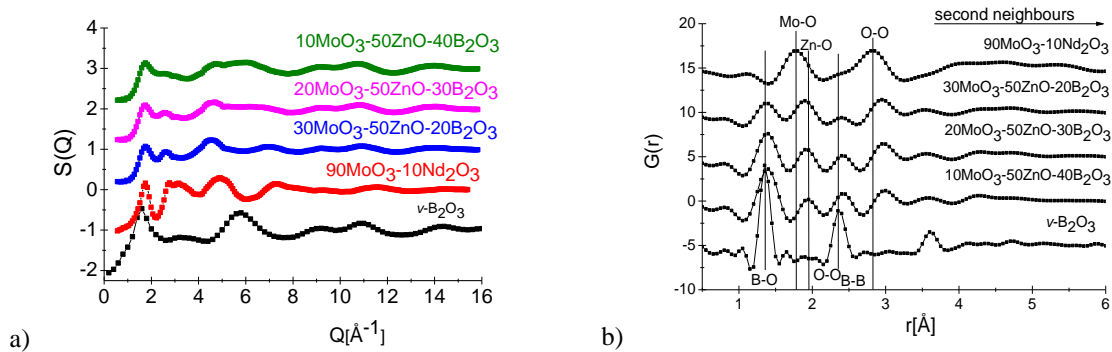
A RMC szimulációs számolások alapján meghatároztam a parciális párkorrelációs függvényeket és a koordinációs számeloszlást, amelyeket a 4. Ábra mutat be. A négykomponensű rendszer esetén tíz parciális párkorrelációs függvényünk van, azonban, minden esetben az alapszerkezet felépítésében szerepet játszó atompárokra mutatom be a kapott eredményeket. A parciális párkorrelációs függvény és a koordinációs számok meghatározásával, megadtam a szerkezet felépítésében szerepet játszó alapegységek jellegét.



4. Ábra. Az Mo-O és B-O (a,c) parciális párkorrelációs függvények és (b,d) koordinációs számeloszlások és az  $^{13}\text{B}/^{11}\text{B}$  arányt bemutató NMR spektrum (e).

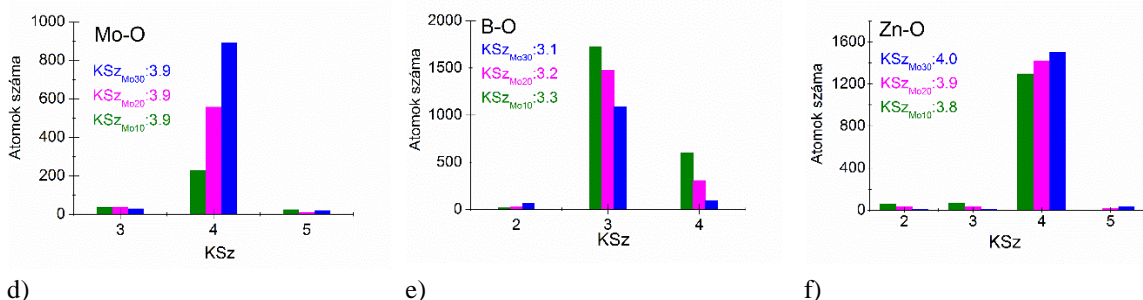
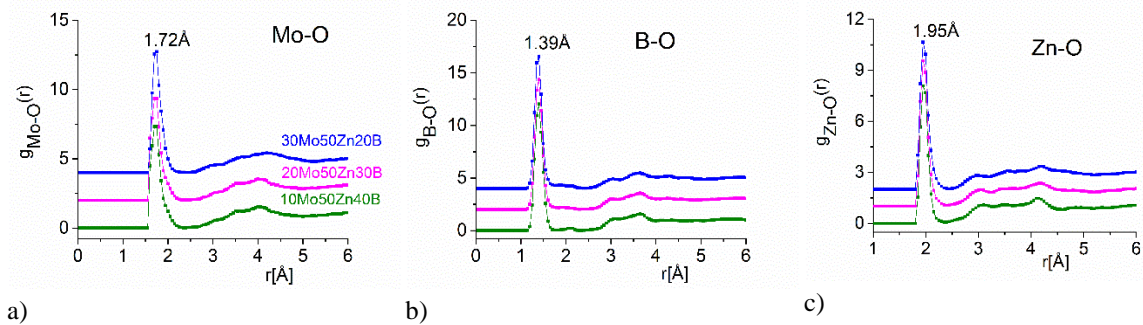
A diffrakciós mérésekből és a kiegészítő szimulációs számolások eredményeként, megállapítottam, hogy az üveg alapszerkezete  $\text{MoO}_4\text{-BO}_4$  és  $\text{MoO}_4\text{-BO}_3$  egységek szoros kapcsolódásaként épül fel, a Nd atomok pedig az így kialakult egységek által közrezárt üregekben helyezkednek el. Az üvegeképző  $\text{B}_2\text{O}_3$  szerkezetalkotó hatása a kialakuló tirgonalis- $\text{BO}_3$  és tetraédreseres- $\text{BO}_4$  egységek jelenlétének is tulajdonítható, amely  $\text{BO}_3/\text{BO}_4$  arány meglétéét az NMR spektroszkópiás mérések is alátámasztják. A kétkomponensű minta esetén  $\text{MoO}_4$ (45%),  $\text{MoO}_5$ (22%) és  $\text{MoO}_6$ (22%) egységek alkotják az alapszerkezetet. A MoNdBO minta vizsgálatánál megállapítottam, hogy a Nd nem vesz részt az szerkezet kialakításában

ezért egy másik elem, az átmeneti fémekhez tartozó Zn-oxid bevitelét vizsgáltam. A ZnO-ot módosító oxidként adtam a rendszerhez, ezeket az oxidokat szerkezet-stabilizáló tulajdonságuk miatt alkalmazzuk, mivel az üveges állapotot mechanikai és kémiai szempontból is állandósítják. A sorozatot a Mo/B arány változásának függvényében vizsgáltam, felhasználva az előző mintasorozatnál kapott eredményeket. Ebben az esetben neutrodiffrakciós méréseket végeztem. Az 5. Ábrán látható szerkezeti függvényből amorf mintasorozatra következtetünk.



5. Ábra. A MoZnBO mintákra a kísérleti és RMC szimulációval illesztett a) neutrodiffrakciós szerkezeti függvények. A színes jel a kísérleti görbét jelzi, míg a vonal az RMC-t valamint a b) radiális eloszlásfüggvények.

Az RMC szimulációs program alkalmazásával meghatároztam a parciális párkorrelációs függvényeket valamint kiszámoltam a koordinációs számokat. Az eredmények egyrészt reprodukálják az előző mintáknál, a Mo és B atomok környezetére kapott eredmények egy részét, valamint meglepő új eredményként jelent meg a Zn atom környezetére kapott adatok. A ZnO-t klasszikus üvegmódosító oxidként vittük a rendszerbe. A Zn atom környezetére kapott adatok azt támasztják alá, hogy a ZnO részt vesz az alapszerkezet kialakításában, üvegalkotó szerepe van.



6. Ábra. Az Mo-O, B-O és Zn-O atompárok (a,b,c) parciális párkorrelációs függvényei és a (d,e,f) koordinációs számeloszlások.

A rendszer vizsgálatakor kapott legfontosabb eredmény, hogy a ZnO módosító oxidként adtuk a rendszerhez, de üvegalkotó jelleget mutat. A kapott eredmények alapján a MoZnBO rendszer alapszerkezetét vegyes  $^{[3],[4]}\text{B-O-}^{[4]}\text{Mo}$  és  $^{[3],[4]}\text{B-O-}^{[4]}\text{Zn}$  környezetek kialakulása és kapcsolódása építi fel. Az ilyen szerkezeti felépítés stabil rendszerre jellemző, és tipikusan amorf minták szerkezetének a sajátossága. A pozitív eredmény kapcsán megpróbáltam előállítani az U-al doppolt összetételeket, azonban a legkevesebb 10%  $\text{UO}_3$  tartalom mellett is kristályos anyagot kaptam.

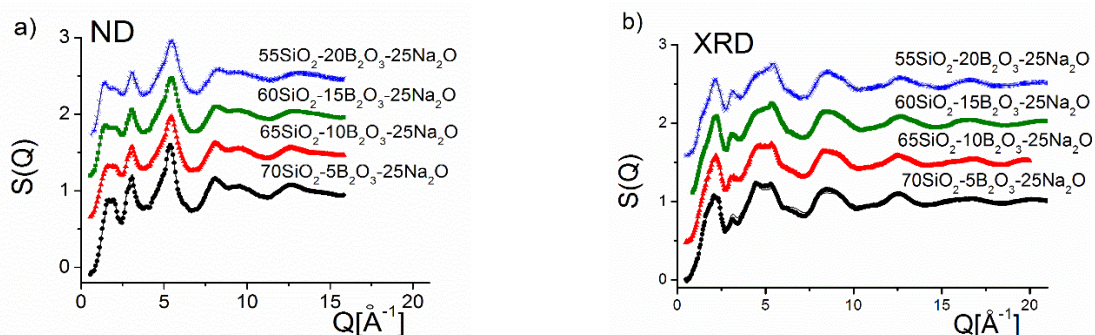
A kapott információk alapján kijelenthető, hogy egy stabil amorf szerkezetünk van annak ellenére, hogy nem tipikusan amorf összetételekre jellemző oxidok vesznek részt a szerkezet felépítésében, ugyanakkor az eredeti célnak nem felel meg, mivel az aktinoida hozzáadásával az amorf állapot megváltozik és kristályosodás lép fel viszonylag alacsony bevitt koncentráció esetén is.

### 3.2. Boroszilikát rendszerek előállítása és szerkezetvizsgálata

A boroszilikát minták előállítását és vizsgálatát az egyszerű komponensektől indulva a többkomponensű sorozatokig szisztematikusan építettem fel, amelyet most itt egymást követő munkafázisokban mutatok be. Az előállításhoz kiinduló anyagként a következő oxidokat használtam:  $\text{SiO}_2$  és  $\text{B}_2\text{O}_3$  (üveg alkotó oxidok- az üveg amorf állapotban való előállításáért felelősek),  $\text{Na}_2\text{O}$  és  $\text{BaO}$  (módosító oxidok, az olvasztási körülményenek optimalizálásáért alkalmazzuk),  $\text{ZrO}_2$  (stabilizáló oxid, a kristályosodás elkerüléséért adjuk a rendszerhez),  $\text{UO}_3$ ,  $\text{CeO}_2$  és  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  voltak. A természetes bór nagy neutronabszorpciója miatt B-11 izotópban dúsított (99,6%) diborátot használtam.

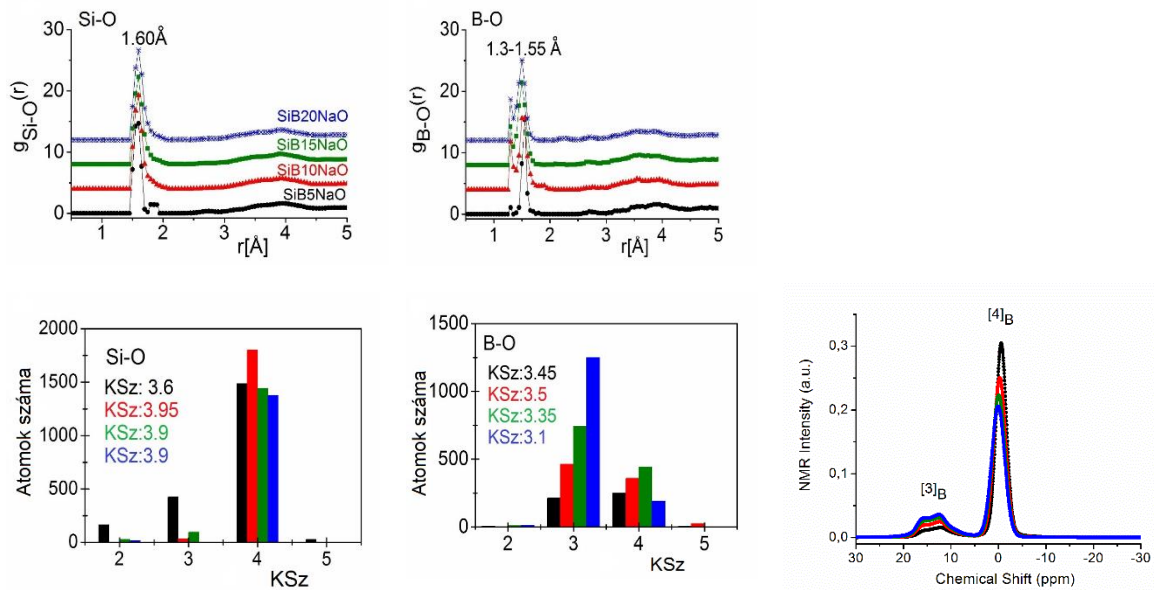
#### 3.2.1. Négy-komponensű $\text{SiBNaO}$ minta-sorozat

A négy-komponensű  $(75-x)\text{SiO}_2 \cdot x\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 25\text{Na}_2\text{O}$   $x=5-20\text{mol}\%$  alap-összetételű nátriumboroszilikát üvegsorozat szerkezeti információit, kombinált neutron- és röntgendiffrakciós mérésekre alkalmazott RMC szimulációs módszerrel határoztam meg valamint vizsgáltam a  $\text{Na}_2\text{O}$  bevitelének hatását. A szerkezeti függvények (7. Ábra) segítségével, megadva a parciális atomi párkorrelációs függvényeket, a koordinációs számokat (KSz), választ adtam az üveg szerkezetének kialakulására (8. Ábra).



7. Ábra. A  $\text{SiBNaO}$  mintákra a kísérleti és RMC szimulációval illesztett a) neutrontdiffrakciós és b) röntgendiffrakciós szerkezeti függvények. A színes jel a kísérleti görbét jelzi, míg a vonal az RMC-t.





8. Ábra. A Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és koordinációs számeloszlások RMC modellezéssel számolva a B5 (fekete), B10 (piros), B15 (zöld) és B20 (kék) sorozatra.

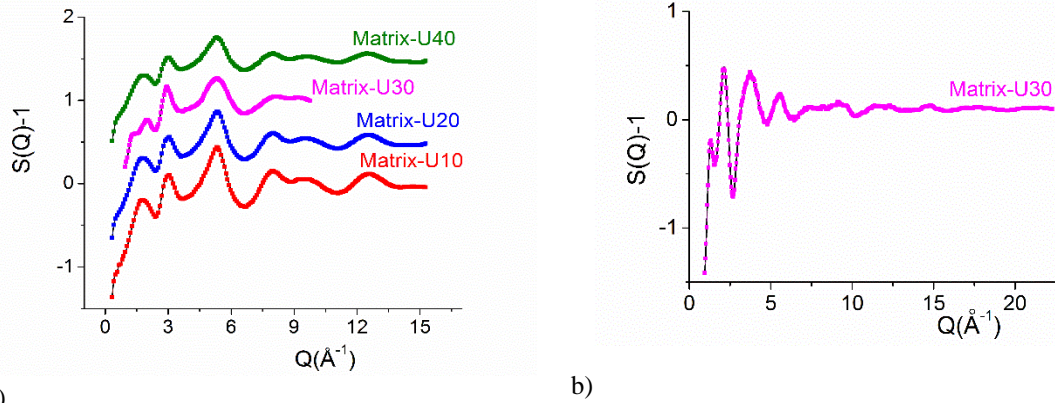
Legfontosabb megállapítás, hogy a Na atom bevitele a hármaskoordinált B atomok környezetét részben átalakítja és megjelennek a négyes koordinált B atomi környezetek. Az  $r_{\text{Si-O}} = 1,60 \pm 0,01 \text{ \AA}$  távolság valamint a koordinációs számokra kapott 3,6; 3,95; 3,9; 3,9 atom értékek a tetraéderezs  $\text{SiO}_4$  kialakulásának valószínűségét mutatják. Ezek az értékek az előzőleg vizsgált amorf  $70\text{SiO}_2 \cdot 30\text{Na}_2\text{O}$  munkánk eredményével megegyezők. A B-O elsőszomszéd távolságra kapott 1,30 és  $1,55 \pm 0,05 \text{ \AA}$  értékeknél, a koncentráció függvényében intenzitás változás figyelhető meg. Mivel az  $1,55 \text{ \AA}$ -os B-O csúcs átfed a Si-O  $1,60 \text{ \AA}$  csúccsal, felmerül a gyanú, hogy a B-O és Si-O parciális párkorrelációs függvények szétválasztása nem megfelelő. Ezért ellenőrző szimulációs futtatásokat végeztünk, amelyekben az  $1,55 \text{ \AA}$ -nél található B-O csúcs kialakulását kizártuk. Ennek eredményeként a szerkezeti függvény illeszkedése romlott, amiből arra következtetünk, hogy a fenti B-O távolság valós. Ez azt a szemléletes szerkezeti képet sugallja, hogy négyes koordinált  $\text{BO}_4$  és  $\text{SiO}_4$  szerkezeti egységek hasonló módon alakulnak ki és kapcsolódnak össze. A  $\text{BO}_3$  és  $\text{BO}_4$  alapegységek jelenlétét az NMR spektroszkópiás eredmények is alátámasztják.

Az egyszerűbb, négy-komponensű minta vizsgálatát azért végeztem el, hogy az alapszerkezetet kialakító Si és B atomi környezetére kapjak minél pontosabb információt. Megállapítottam, hogy a Si és B atomok alkotta térhálós szerkezet a Na atom bevitelével felhasad, a kötések felhasadása mentén pedig olyan üregek alakulnak ki ahová a nagyobb atomok beépülhetnek, így megteremtve azt a feltételt, hogy pl. az U atom bekötődjön a Si és B atomok alkotta hálószerkezetbe. Ez azért is fontos eredmény, mert a több-komponensű rendszerek esetén is ezek az atomok - a Si és B atomok - felelősek az üveg-állapot kialakulásáért.

### 3.2.2. Hét-komponensű SiNaBaZrUO minta-sorozat

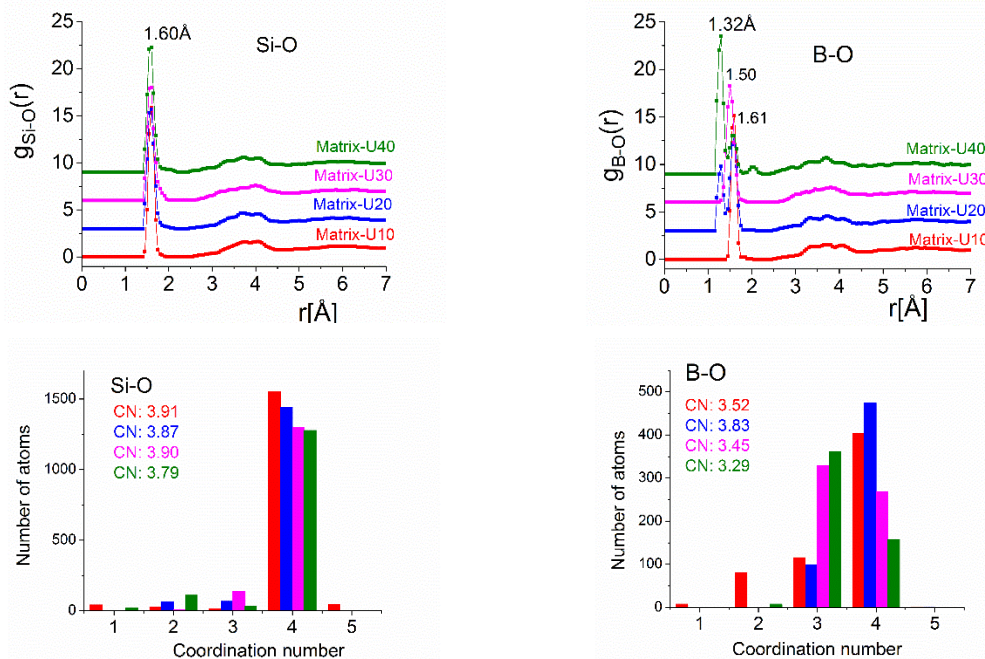
Kísérleteim során bebizonyítottam, hogy a többkomponensű üveg-mátrix a  $55\text{SiO}_2 \cdot 10\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 25\text{Na}_2\text{O} \cdot 5\text{BaO} \cdot 5\text{ZrO}_2$  (=Mátrix)- összetétellel stabil szerkezetet mutat, kristályosodás nem figyelhető meg. Arra a következtetésre jutottam, hogy ezt fogom Mátrix – anyagként használni és különböző koncentrációban  $\text{UO}_3$ -t adva meghatározom a maximálisan

adagolható aktinoida, jelen esetben  $UO_3$  mennyiséget. Sikerült előállítani a  $(100-x)\%[55SiO_2 \cdot 10B_2O_3 \cdot 25Na_2O \cdot 5BaO \cdot 5ZrO_2] + x\%UO_3$  ahol,  $x=10,20,30,40$  sorozatot. Az RMC program által generált szerkezeti függvények jó egyezést mutatnak a kísérleti spektrumokkal mind a négy minta esetén (lásd 9. Ábra).



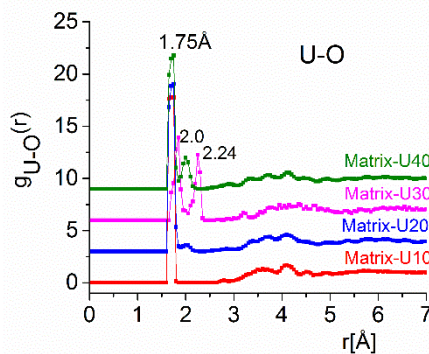
a) b)  
 9. Ábra. A SiBNaBaZrUO minták kísérleti és RMC szimulációval illesztett a) neutrondiffrakciós és b) röntgendiffrakciós szerkezeti függvényei. A színes jel a kísérleti görbét jelzi, míg a vonal az RMC-t.

Azt is megfigyelhetjük, hogy a minták atomi Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvényei és a koordinációs számok, hasonló jellegűek az egyszerűbb összetételeknél kapott eredményekkel (10. Ábra). Ezek az eredmények azt bizonyítják, hogy egy több-komponensű rendszer esetén is stabil Si-O-B alapú hálószerkezet alakul ki, és a hozzáadott viszonylag nagy mennyiségű  $UO_3$  bevétele nem okoz alapszerkezeti módosulást.



10. Ábra. A Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és koordinációs számeloszlások RMC modellezéssel számolva a Mátrix-U10 (piros), Mátrix-U20 (kék), Mátrix-U30 (magenta) és Mátrix-U40 (zöld) sorozatra.

Megállapítottuk, hogy az  $\text{UO}_3$  tartalmú sorozat kevésbé hajlamos a kristályosodásra, mint az urán nélküli mátrix-üveg, és a higroszkópos tulajdonságai is kedvezőek. Az U-O atomi parciális párkorrelációs függvény éles első-szomszéd eloszlást mutatnak. Az  $\text{UO}_3$  koncentráció változás nyomon követhető az U-O párkorrelációs függvények intenzitás változásában is. A Mátrix-U30 összetétel esetén a röntgendiffrakciós mérésnek köszönhetően több információt kapunk az U atom környezetére, ami a 11. Ábrán is látszik, hiszen két stabil, különálló csúcs jelenik meg  $1,8 \pm 0,05$  és  $2,24 \pm 0,05 \text{ \AA}$ . A Mátrix-U10(20,40) mintákra még folyamatban vannak a röntgendiffrakciós kiértékelések, a 9.a. Ábrán bemutatott neutrondiffrakciós mérésekből pedig nem kapunk elegendő információt a nehéz atomokra így az U-atomra sem. Ezért ezeknél a mintáknál hiányzik az U-O csúcsának a felhasadása.



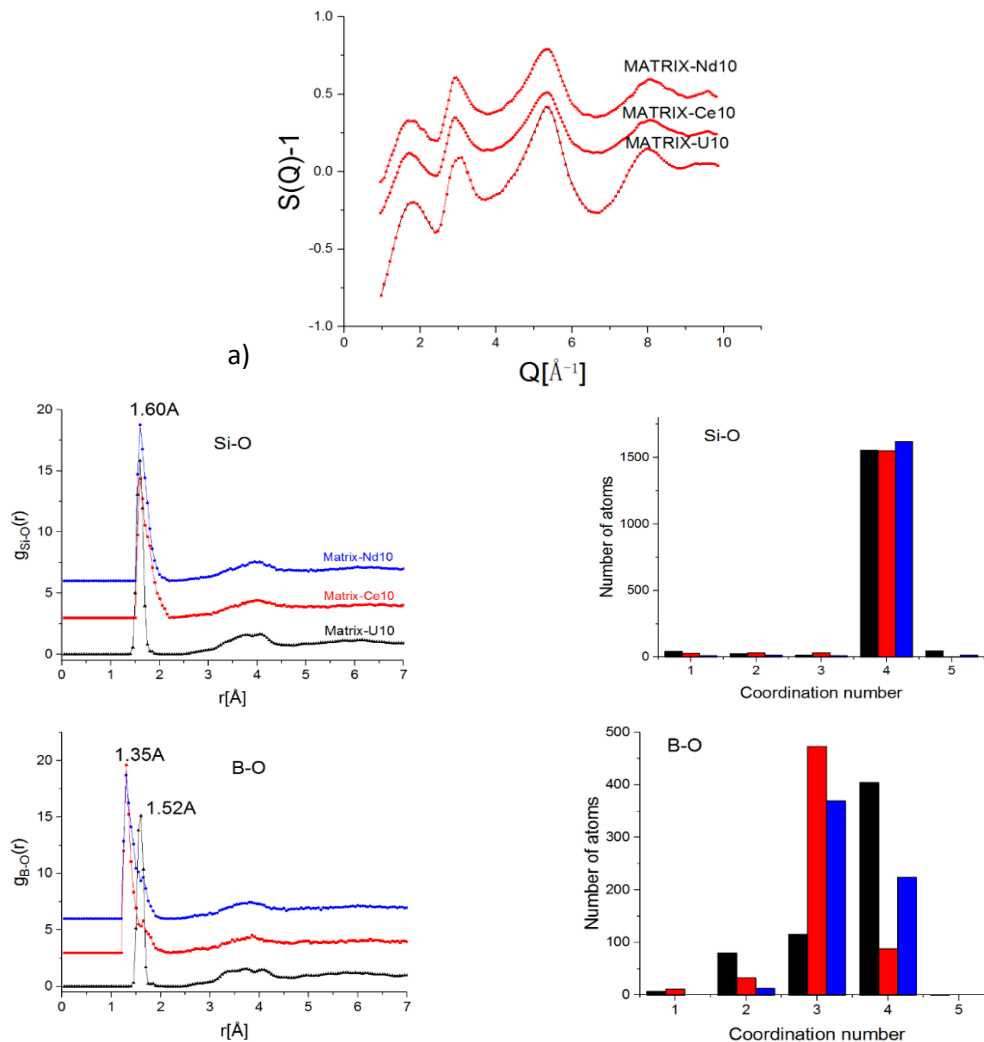
11. Ábra. Az U-O parciális párkorrelációs függvények a Mátrix-U10(20,30,40) összetételek esetén.

Erős korreláció figyelhető meg az U atom és az üvegeképző és üvegformáló Si, B, Na atomok és a szerkezet-stabilizáló Zr atomok között, amely nagyfokú szerkezeti stabilitásra utal. Ezekből az eredményekből arra következtetnek, hogy az U atom részt vesz az alapszerkezet kialakításában, biztosítva a beépülést az amorf rendszerbe. A munka egyik fő célja volt a maximális hulladék mennyiség meghatározása, amely stabilan be tud épülni az üveg-mátrixba, amelyet ez esetben a bevitt  $\text{UO}_3$  koncentrációval tudunk megadni. A diffrakciós szerkezetvizsgálati eredmények azt mutatják, hogy ez az összetétel 40s%  $\text{UO}_3$ -ot tud stabilan magába foglalni, úgy, hogy tökéletesen amorf mintát kapjunk. Az üveg alapszerkezete nem változik, az alapszerkezet kialakulásáért felelős Si és B atomi környezetek az egyszerűbb mintákhoz hasonló módon, stabilan és reprodukálhatóan alakulnak ki. A 45s%  $\text{UO}_3$  tartalmazó minta már részben kristályos fázisokat mutat.

### 3.2.3. Hét-komponensű SiBNaBaZrU(Ce,Nd)O minta-sorozat

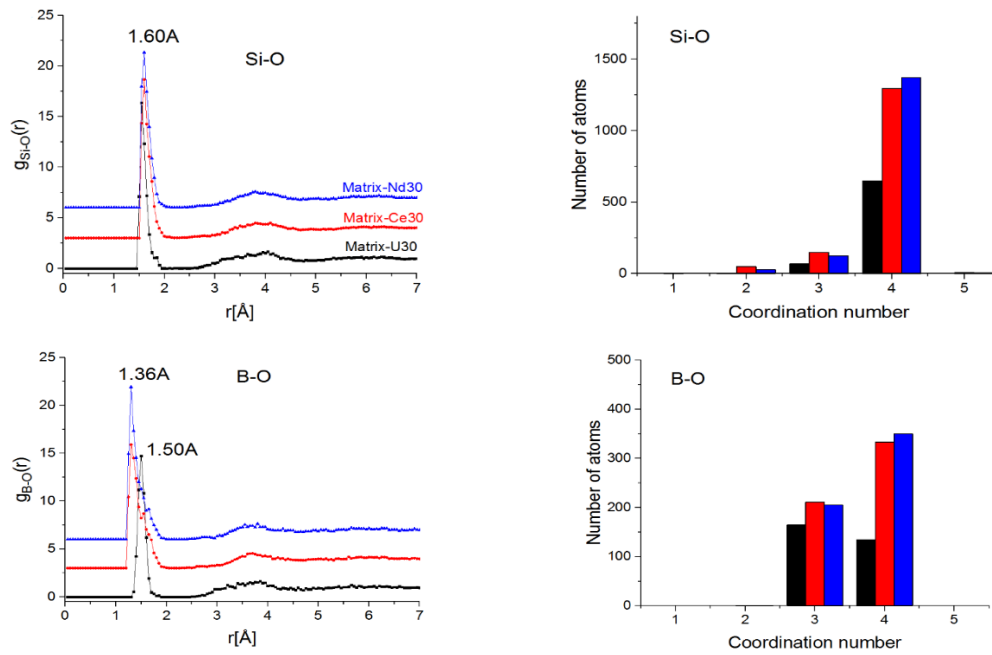
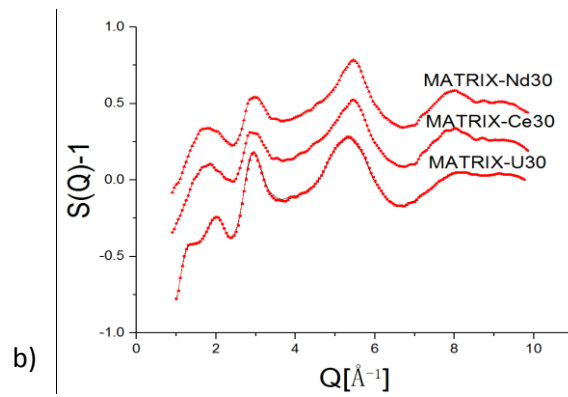
A kifejlesztett összetétel többféle radionuklid befogadására is alkalmas kell legyen, ezért az  $\text{UO}_3$  mintákra kapott biztató eredmény további minta-előállítást vont maga után. A visszamaradó radioaktív hulladék jórészt aktinoidákból és más hasadási termékekből állnak, ezek beszerzése bonyolult és felhasználásuk csak speciális erre a célra engedélyezett laboratóriumban lehetséges, ezért az aktinoidák szimulálására a kémiaiailag hasonló módon viselkedő lantanoidákat használtam. A Pu beépülését Ce-al szimuláltam, az Am és Cm helyett Nd-ot használtam, amely analógia a szakirodalomban elfogadott megoldás. Előállítottam és vizsgáltam a  $90s\%[\text{Mátrix}]+10s\%X$  és  $70s\%[\text{Mátrix}]+30s\%X$ , ahol  $X=\text{CeO}_2$ ,  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  sorozatokat, amelyek az előzetes vizsgálatok alapján stabil amorf szerkezettel rendelkeznek. A

12. Ábra az ezekre az összetételekre mutatja be az első szerkezeti eredményeket valamint a jobb áttekinthetőség miatt szintén ábrázoltam az 10s% és 30s%  $\text{UO}_3$  tartalmazó mintákra kapott eredményeket is. Az alapszerkezet felépítésében szerepet játszó Si és B atomi környezetek hasonló stabil kialakulást mutatnak, mint az egyszerűbb rendszerek esetén.



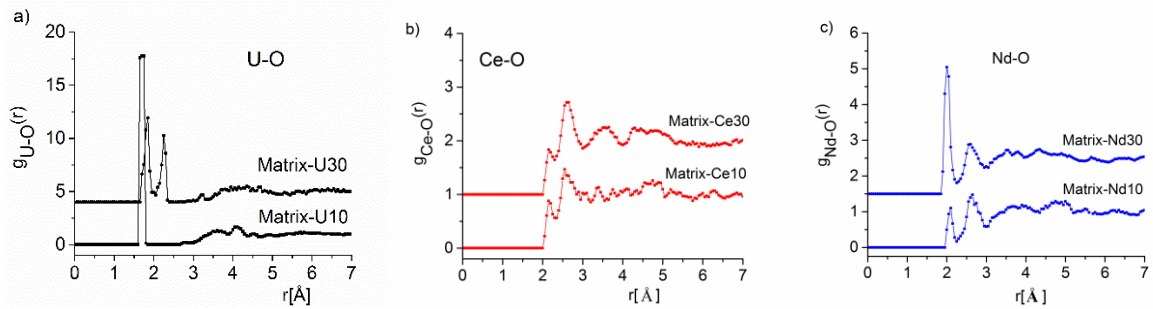
12a. Ábra. A Si-O és B-O parciális pátkorrelációs függvények és koordinációs számeloszlások RMC modellezéssel számolva a Mátrix-U10 (fekete), Mátrix-Ce10 (piros) és Mátrix-Nd10 (kék) sorozatra.

Megállapítottam, hogy az alapszerkezet kialakulásáért felelős  $^{4}\text{Si}$  és  $^{3,4}\text{B}$  alapegységek hasonló módon alakulnak ki, mint az előzőekben vizsgált négy-komponensű- és U-tartalmú mintáknál. Az üvegalkotó oxidok hasonló módon viselkednek, az alapszerkezet kialakulása stabilan megtörténik nem csak a 10s% és 30s%  $\text{UO}_3$  esetén, hanem az aktinoidákat modellező lantanoidák:  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  bevitele esetén is.



12b. Ábra. A Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és koordinációs számeloszlások RMC modellezéssel számolva a Matrix-U30 (fekete), Matrix-Ce30 (piros) és Matrix-Nd30 (kék) sorozatra.

A karakterisztikus U-O, Ce-O és Nd-O parciális párkorrelációs függvények kialakulása erős rövid-távú rend kialakulását jelenti mindhárom minta esetén, amelyet a 13. Ábra mutat be. A vizsgált összetételek esetén az U, Ce, Nd atomok beépülnek az üveg alapszerkezetébe. További vizsgálatok és kiértékelések még folyamatban vannak.



13. Ábra. Az a) U-O, b) Ce-O és c) Nd-O parciális párkorrelációs eloszlásfüggvények a Matrix-U,Ce,Nd(10) (rombusz) és a Matrix-U,Ce,Nd(30) (kör) mintákra.

A vizsgált egyszerű és több-komponensű mintákra kapott alapszerkezet felépítésében az üveg alkotó Si és B atomok a felelősek. A Si és B környezetek stabil kialakulásából arra következtek, hogy az aktinoida (U) és lantanoidák (Ce, Nd) bevitele nem módosítja az alapszerkezet kialakulását, tehát a megválasztott mátrix-anyag képes három különböző fajta aktinoida és lanatanoida atomot is stabilizálni.

### 3.2.4. Nyolc/kilenc-komponensű SiBNaBaZrUCe(Nd)O minta-sorozat

A tárolásra és ezáltal kondicionálásra kerülő nagy aktivitású hulladék nem csak egyfajta aktinoidát tartalmaz, hanem egy keverékről beszélünk. Ezért amellett, hogy az eddigi irodalmi adatokhoz képest nagyobb súlysúlyalékban tudunk aktinoidát (U) és aktinoidákat modellező lantanoidákat stabilizálni, meg kell vizsgálni azt a lehetőséget, hogy a mátrix összetételünk alkalmas-e a többféle elem befogadására. A már jól ismert olvasztási technikával előállítottam a vegyes aktinoidát-lantanoidát tartalmazó mintákat, a következő összetételekkel:

1. 70s% [SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Na<sub>2</sub>O-BaO-ZrO<sub>2</sub>]+20s% UO<sub>3</sub>+10s% CeO<sub>2</sub>
2. 70s% [SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Na<sub>2</sub>O-BaO-ZrO<sub>2</sub>]+20s% UO<sub>3</sub>+10s% Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>
3. 70s% [SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Na<sub>2</sub>O-BaO-ZrO<sub>2</sub>]+10s% UO<sub>3</sub>+10s% CeO<sub>2</sub>+10s% Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Ilyen kevés komponenssel rendelkező és hulladékot modellező több-féle lantanoidát és aktinoidát tartalmazó mintasorozatot nekem sikerült először előállítani, amely nagymértékben hozzájárul a hulladék beépülési mechanizmusának megértéséhez. Neutron diffrakciós mérések alapján a minták tökéletesen amorf jelleggel bírnak, azonban a rendszer bonyolultsága miatt további mérések szükségesek az atomi szerkezet meghatározására. A munka még folyamatban van.

## 4. Összefoglaló

A nagy aktivitású radioaktív hulladékok kondicionálására kétfajta üvegösszetételt vizsgáltam. A Mo-alapú mintasorozatok vizsgálata során megmutattam, hogy teljesen meglepő módon a Mo atom részt vesz az üveg alapszerkezetének a kialakításában. A B atom mint klasszikus üvegeképző vesz részt a szerkezet kialakításában, azonban az alapegységek - BO<sub>3</sub> és BO<sub>4</sub> - kialakulását nem befolyásolják a bevitt nehéz fémek. A Zn atom környezetére kapott információk azt támasztják alá, hogy szerkezetépítő hatása van és nem a módosító hatás érvényesül, mint ahogy eredeti szempont szerint hozzáadtam a rendszerhez. Mindkét vizsgált mintasorozat stabil és jól meghatározott alapszerkezettel rendelkezik, azonban ha aktinoidát

vagy lantanoidát adok a rendszerhez az amorf jelleg eltűnik, kristályosodás figyelhető meg, ami a hulladék kondicionálása szempontjából nemkívánatos folyamat.

A boroszilikát üvegrendszert szisztematikus előállítási és vizsgálati folyamat során jellemeztem. Lépésről-lépésre egy olyan több-komponensű mátrixüveget fejlesztettem ki, amely alkalmas lehet a radionuklidok stabil befogadására. Meghatároztam az egyszerűbb összetétellel rendelkező négy-komponensű üveg szerkezetét jellemző legfontosabb atomi paramétereket, amely az alapszerkezet kialakulását biztosítja. Így meghatároztam az üvegalkotó Si és B atomok elemi környezeteit, amelyek meghatározzák a beépülést és hozzásegített a több-komponensű rendszer megértéséhez. Az öt-komponensű rendszerhez, amelyet mátrix-összetételnek neveztem el, növekvő koncentrációban  $\text{UO}_3$  adtam, vizsgáltam az elsőszomszéd-távolságokat és a koordinációs számeloszlásokat. Megállapítottam, hogy az egyszerűbb négy-komponensű mintákhoz hasonlóan a mátrixüveg szerkezeti felépítésében ugyancsak a tetraédes koordináltságú  $(\text{SiO}_4)^{4-}$  egységek és a trigonális  $\text{BO}_3$  - tetraédes  $\text{BO}_4$  egységek játszik a fő szerepet. A bór egy része beépül a Si-alapú hálószerkezetbe és  $^{13}\text{B-O-}^{14}\text{Si}$  illetve  $^{14}\text{B-O-}^{14}\text{Si}$  vegyes láncok alakulnak ki. Meghatároztam a maximálisan adalékolható  $\text{UO}_3$  mennyiséget, amit még stabilan magában tud tartani a mátrix-összetétel, ez 40s%-ra adódott. Ezt a magas koncentráció bevitelt elsőként tudtam megvalósítani és szerkezeti magyarázatot is adtam az U atom beépülésére.

Előállítottam és megvizsgáltam a 6-komponensű, 10s% és 30s%-ot tartalmazó cérium- és neodímiumoxid tartalmú üvegsorozatot. A diffrakciós mérések RMC szimulációs kiértékelése során megállapítottam, hogy stabil, amorf rendszer jön létre. A lantanoida tartalmú minták alapszerkezetének a felépítésében az egyszerűbb összetételeknél megismert tetraédes  $\text{SiO}_4$  egységek és vegyes trigonális  $\text{BO}_3$  és tetraédes  $\text{BO}_4$  egységek vesznek részt, hasonlóan az urán tartalmú mintáknál.

Az U atomi beépülésére végzett vizsgálatok azt mutatják, hogy a karakterisztikus első- és másodsomszéd távolságok alakulnak ki, amely kialakulás nagyfokú szerkezeti beépülésre utal. A másodsomszéd távolságok esetén az U atom O atomon keresztül kapcsolódik közvetlenül az üvegképző-, módosító- és stabilizáló Si, B, Na, Zr atomokhoz. Ezek az eredmények arra engednek következtetni, hogy az U az alapszerkezetbe épül be és vesz részt a szerkezet felépítésben, stabilizálva a rendszert. Stabil elsőszomszéd távolságot kaptam a Ce-O és Nd-O atompárokra, amelyek alátámasztják, hogy a Ce és Nd atomok szintén részt vesznek a szerkezet kialakításában. Az elvégzett szerkezeti vizsgálatokból arra következtetek, hogy sikerült egy jól meghatározott mátrix-összetételt előállítani, amelynek az alapszerkezete annak ellenére is stabil marad, hogy viszonylag nagy súlyszázalékban aktinoid- és lantanoida-oxidot adtam a rendszerhez. Szintén elsőként sikerült előállítani többfajta aktinoida/lantanoida elemet tartalmazó összetételt, amelyek az előzetes vizsgálatok alapján stabil szerkezettel rendelkeznek, ugyanakkor a szerkezet teljes feltérképezéséhez még további vizsgálatok szükségesek.

Vizsgálataink és eddigi eredményeink alapján feltételezhető, hogy a kidolgozott mátrix-boroszilikát üveg a bemutatott összetétellel potenciális radioaktív hulladék kondicionáló anyagként használható. Gazdasági és környezeti szempontból is elfogadható megoldásokat kínálva a nagy aktivitású radioaktív hulladékok biztonságos kondicionálására.

A munkába bekapcsolódott egy fiatal doktorandusz (BME Fizikai Tudományok Doktori Iskola) akinek az MSc dolgozata is már ebben a témában született.

Szintén jelentős eredmény, hogy a projektnek köszönhetően összeállt egy jól felszerelt minta-előállító laboratórium, amelyet használhatunk aktív és inaktív minták előkészítésére, és amelyben hosszútávon különböző projektek számára mintát lehet előállítani, ez jelentős infrastrukturális fejlesztés.

A munkához kapcsolódó cikkek:

1. Fabian M, Svab E, Krezhov K, Neutron diffraction and RMC modeling of new amorphous molybdate system, *Journal of Physics-Conf. Series* 558:(1) 012017. 6 p. (2014)
2. Fábrián M., Atomerőművi hulladékok kezelése 1. rész *Fizikai Szemle* 65:(7-8) pp. 241-244. (2015)
3. Fábrián M., Atomerőművi hulladékok kezelése 2. rész *Fizikai Szemle* 65:(9) pp. 311-314. (2015)
4. Fabian M, Svab E, Krezhov K, Network structure of molybdate glasses by neutron and X-ray diffraction and reverse Monte Carlo modelling, *Journal of Physics-Conf. Series* 746:(1) 012068. 8 p. (2016)
5. Fabian M, Svab E, Formation of Mixed Bond-Angle Linkages in Zinc Boromolybdate Glasses, *Journal of the American Ceramic Society* 99:(7) pp. 2292-2299 (2016)
6. Fábrián Margit, Amorf anyagok összetételének optimalizálása radioaktív hulladékok kondicionálására, *Fizikai Szemle* 66:(7-8) pp. 221-228 (2016)
7. Fábrián M, Araczkai Cs, Basic network structure of SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Na<sub>2</sub>O glasses from diffraction and reverse Monte Carlo simulation, *Physica Scripta* (5) Paper 054004. pp.11 (2016)
8. Fabian M, Svab E, Krezhov K, Network structure with mixed bond-angle linkages in MoO<sub>3</sub>-ZnO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glasses: Neutron diffraction and reverse Monte Carlo modelling, *Journal of Non-Crystalline Solids* 433: pp. 6-13 (2016)
9. Fabian M, Araczkai Cs, Development of Glass Matrix for Radioactive Waste Conditioning, *Material Science Forum*, elfogadva (2016)
10. M Fabian, E Svab, M Milanova, K Krezhov, Network structure of Mo-oxide glasses, *Journal of Physics-Conf. Series*, elfogadva (2016)
11. M. Fábrián, Cs. Araczkai, Development of new glass matrices for conditioning of high level radioactive wastes, *Nuclear Science and Engineering*, elfogadva (2017)

Konferencia kivonatok, szóbeli előadás:

1. M. Fabian, C. Pantalei, K. Krezhov, E. Sváb, Neutron diffraction and RMC modeling of new amorphous molybdate system, *American Conference on Neutron Scattering*, 2014. május, Knoxville, Egyesült Államok
2. M. Fabian, E. Svab, K. Krezhov, Nanoscale structure of glasses by neutron diffraction, *10<sup>th</sup> International Conference on Physics of Advanced Materials*, meghívott előadó, 2014. Szeptember, Várna, Bulgária
3. M. Fábrián, Optimization and structural characterization of functional oxide materials, *10<sup>th</sup> International Conference on Physics of Advanced Materials*, meghívott előadó, 2014. szeptember, Iasi, Románia



4. Fábíán M., A nukleáris energia radioaktív hulladékainak tárolási kérdései, *ELFT Őszi Iskola*, 2014. október, Mátrafüred, Magyarország
5. Fábíán. M. Radioaktív hulladékok kondicionálása, „Zöld Energia”-Felsőoktatási ágazati együttműködés a zöld gazdaság fejlesztésére az energetika területén konferencia, 2015. június. Veszprém, Magyarország
6. M. Fabian, Diffraction and reverse Monte Carlo modeling of functional amorphous systems, *60<sup>th</sup> DAE-Solid State Physics Symposium, meghívott előadó*, 2015. december, Új-Delhi, India
7. Fábíán M. Amorf anyagok összetételek optimalizálása radioaktív hulladékok kondicionálására, *MTA Fizikai Tudományok Osztálya Szilárdtest-fizikai Tudományos Bizottságának ülése*, 2016. május, Budapest
8. M. Fabian, Cs. Araczkai, Structure and incorporation studies in a glass network: lanthanides and uranium surroundings by neutron- and X-ray diffraction, *American Conference on Neutron Scattering*, 2016. július, Long Beach, Egyesült Államok
9. Fábíán M., Új típusú optimalizált ritkaföldfém rendszerek karakterizálása neutron és röntgen szinkrotron forrással, *ELFT Fizikus Vándorgyűlés*, 2016. augusztus, Szeged, Magyarország
10. M. Fabian, New Directions in Exotic Amorphous Materials Studies, *19<sup>th</sup> International School on Condensed Matter Physics, meghívott előadó*, 2016. szeptember, Várna, Bulgária
11. Fábíán M, Radioaktív hulladékok kondicionálására optimalizált amorf összetételek szerkezetvizsgálata, *Őszi Radiokémiai Napok*, 2016. október, Balatonszárszó, Magyarország, 2016. p. 16. (ISBN: [978-963-9970-69-4](#))
12. M. Fabian, Atomic structure of functional oxide materials by diffraction methods, *6<sup>th</sup> CNS-Conference on Neutron Scattering, meghívott előadó*, 2016. november, Mumbai, India
13. M. Fabian, Optimization and structural characterization of functional oxide materials, *International Conference on Recent Advances in Fundamental and Applied Science, meghívott előadó*, 2016. November, Phagwara, Punjab, India

#### Poszterek:

1. M. Fabian, E. Svab, Structure characterization of zinc boromolybdate glasses, *VI European Conference on Neutron Scattering, poszter*, 2015. augusztus, Zaragoza, Spanyolország
2. Fábíán. M. Újragondolt üvegek - avagy radioaktív hulladékok kondicionálása, *Országos Anyagtudományi Konferencia, Legjobb poszter díj*, 2015. október, Balatonalmádi, Magyarország

A témához kapcsolódó blog:

[www.aktiv-matrixok.hu](http://www.aktiv-matrixok.hu)