

^{137}Cs u radioaktivnim oborinama u Zagrebu **^{137}Cs in Fallout in Zagreb****Zdenko Franić***Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada Sveučilišta
u Zagrebu, Odjel za zaštitu od zračenja, Zagreb, Hrvatska*

Primljeno 16. rujna 1992, u konačnom obliku 28. listopada 1992.

Sažetak

^{137}Cs u radioaktivnim oborinama ispituje se od 1965. godine. Nakon prestanka većih atmosferskih pokusa s nuklearnim oružjem radioaktivnost eksponencijalno pada. Uslijed nuklearne nesreće u Černobilju dolazi do značajnog porasta aktivnosti. Vrijeme boravka ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama ukazuje na mehanizam kojim je cezij dospio u atmosferu. Porast aktivnosti svakog proljeća može se objasniti uobičajenim meteorološkim fenomenima. Izračunata je brzina depozicije za period od 1986. do 1990. godine. Raspravljani su omjeri aktivnosti ^{137}Cs : ^{134}Cs u oborinama.

Ključne riječi: ^{137}Cs , radioaktivne oborine, srednje vrijeme boravka, brzina depozicije

Abstract

Fallout ^{137}Cs in Zagreb has been investigated since 1965. An exponential decline in radioactivity followed the nuclear moratorium. After the nuclear accident in Chernobyl, high radioactivity levels were detected again. The residence time of ^{137}Cs in fallout reflects the mechanism by which it was released into the atmosphere (atmospheric nuclear weapon tests or the Chernobyl nuclear accident). The spring peak of radioactivity in fallout can be explained by meteorological phenomena. The deposition velocity of ^{137}Cs for the period 1986 - 1990 was calculated. ^{137}Cs : ^{134}Cs activity ratios in fallout were discussed.

Key words: ^{137}Cs , fallout, mean residence time, deposition velocity

1. Uvod

Atmosfera je primarni recipijent radioaktivnog materijala podrijetlom od atmosferskih testova nuklearnog oružja ili ispuštanja iz nuklearnih postrojenja, a zrak je medij u kojem dolazi do disipacije i transporta te radioaktivne kontaminacije.

Radioaktivni materijal koji se deponira iz atmosfere naziva se radioaktivnim oborinama (fallout). Taj materijal može se taložiti i za vremena bez oborina (kiše, snijega itd.), te se naziva suhim radioaktivnim oborinama (dry

fallout), za razliku od mokrih radioaktivnih oborina (wet fallout). Nakon atmosferskog testa nuklearnog oružja nastale radioaktivne oborine mogu biti lokalne, troposferske i stratosferske.

Lokalne oborine sačinjavaju krupne čestice radioaktivnog materijala koji padne odmah nakon eksplozije, uz samo mjesto eksplozije.

Troposferske oborine sačinjavaju finije čestice (aerosoli) koje ostaju u troposferi i padnu obično tijekom 30 dana nakon eksplozije i to prvenstveno kao rezultat precipitacije. Te čestice se deponiraju u pravilu na zem-

ljopisnoj širini mjesta eksplozije.

Stratosferske oborine dolaze od najfinijih čestica, koje godinama ostaju blokirane u stratosferi i deponiraju se po čitavoj zemaljskoj kugli, ali uglavnom na hemisferi na kojoj je nuklearna eksplozija izvršena, budući da je brzina miješanja stratosferskih zračnih masa između sjeverne i južne hemisfere malena.

Taloženje, odnosno transport radionuklida iz stratosfere u formi suhih i mokrih radioaktivnih oborina je vrlo složen proces. S najviših slojeva stratosfere aerosoli se uslijed gravitacije spuštaju prema nižim slojevima. Vrtložna difuzija u nižim slojevima stratosfere i višim slojevima troposfere je nepravilno gibanje zračnih masa koje ipak ima neto smjer prema površini Zemlje. Ti procesi ovise o godišnjem dobu i zemljopisnoj širini, te dovode do proljetnih maksimuma aktivnosti radioaktivnih oborina, kao i do veće globalne distribucije u srednjim zemljopisnim širinama. U radioaktivnom materijalu koji se oborinama deponira na tlo, ^{137}Cs je jedan od najopasnijih radionuklida zbog dugog vremena poluraspada i vrlo velike biološke aktivnosti. Budući da tijekom fisije nastaje u velikom postotku, koncentracije ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama su znatne.

2. Materijal i metode

Oborine su skupljane lijevcima površine 1 m^2 na lokaciji Instituta (Zagreb, Ksaverska cesta 2). Za gamaspektrometrijsku analizu se kumulativni mjesečni uzorak upari na volumen jedne litre.

Uzorci zraka skupljaju se kontinuirano 23 sata na dan. Volumen propuštenog zraka kroz filter papir iznosi cca. 10000 m^3 mjesečno.

Gamaspektrometrijska mjerenja vršena su na sistemu koji se sastoji od ORTEC Ge(Li) detektora (FWHM 1.82 keV na 1.33 MeV), povezanim sa 4096-kanalnim analizatorom za skupljanje podataka i osobnim računalom za automatsku obradu. Detektor je zaštićen olovnom štitom debljine 10 cm, slojem kadmija debljine 2 mm te slojem bakra također debljine 2 mm.

Kalibracija efikasnosti izvršena je pomoću radioaktivnih standarda Međunarodne agencije za atomsku energiju (IAEA) i Svjet-

Z. Franić: ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama u Zagrebu

ske zdravstvene organizacije (WHO). Uzorci su mjereni u Marinelli posudama volumena 1 litre koje su stavljane direktno na detektor.

Vrijeme brojanja, ovisno o aktivnosti uzoraka, bilo je $10000 - 80000 \text{ s}$.

3. Srednje vrijeme boravka ^{137}Cs u atmosferi

Empirički je ustanovljeno da se proces taloženja radioaktivnog materijala iz atmosfere matematički može najbolje opisati eksponencijalnom jednadžbom oblika (UNSCEAR 1982):

$$N(t) = N(0) e^{-k t} \quad (1)$$

gdje su:

$N(t)$ koncentracija radioaktivnog materijala u vrijeme t ;

$N(0)$ koncentracija radioaktivnog materijala u trenutku unošenja u atmosferu ($t=0$);

t vrijeme proteklo od trenutka unošenja radioaktivnog materijala u atmosferu do trenutka mjerenja aktivnosti.

Prema analogiji sa zakonom radioaktivnog raspada vrijedi jednadžba:

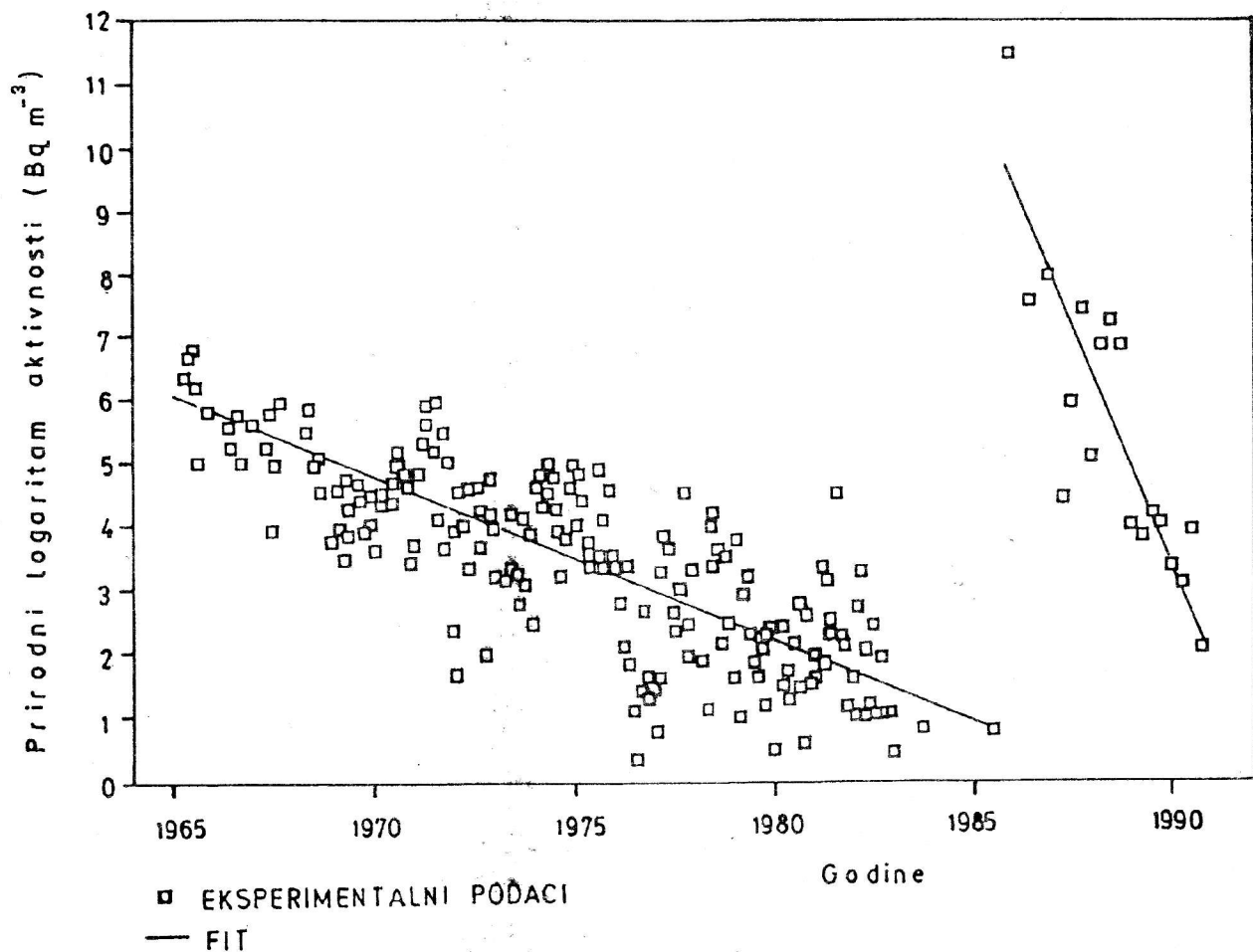
$$T_s = \frac{1}{k} = \frac{T_{1/2}}{\ln 2} \quad (2)$$

gdje je:

T_s srednje vrijeme boravka cezija u atmosferi (stratosferi);

$T_{1/2}$ vrijeme boravka cezija u atmosferi, odnosno vrijeme potrebno da koncentracija radioaktivnog materijala padne na 1/2 početne vrijednosti.

Na slici 1. prikazana je aktivnost ^{137}Cs u oborinama u Zagrebu u periodu od 1965. do 1990. godine. Vidljiv je velik porast aktivnosti u svibnju 1986. godine, nakon nuklearne nesreće u Černobilju kod Kieva. Funkcijskom minimalizacijom simplex metodom (Nelder i Mead 1965) nađeni su parametri jednadžbe (1) koji najbolje opisuju eksperimentalne vrijednosti. Prema jednadžbi (2), za period siječanj 1965 - travanj 1986. srednje vrijeme boravka ^{137}Cs u oborinama iznosi 3.72 godine, a za period svibanj 1986 - prosinac 1990. godi-



Sl. 1. Aktivnost ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama u Zagrebu u periodu od 1965. do 1990. godine.
 Fig. 1. ^{137}Cs fallout activity in Zagreb in the period 1965 - 1990.

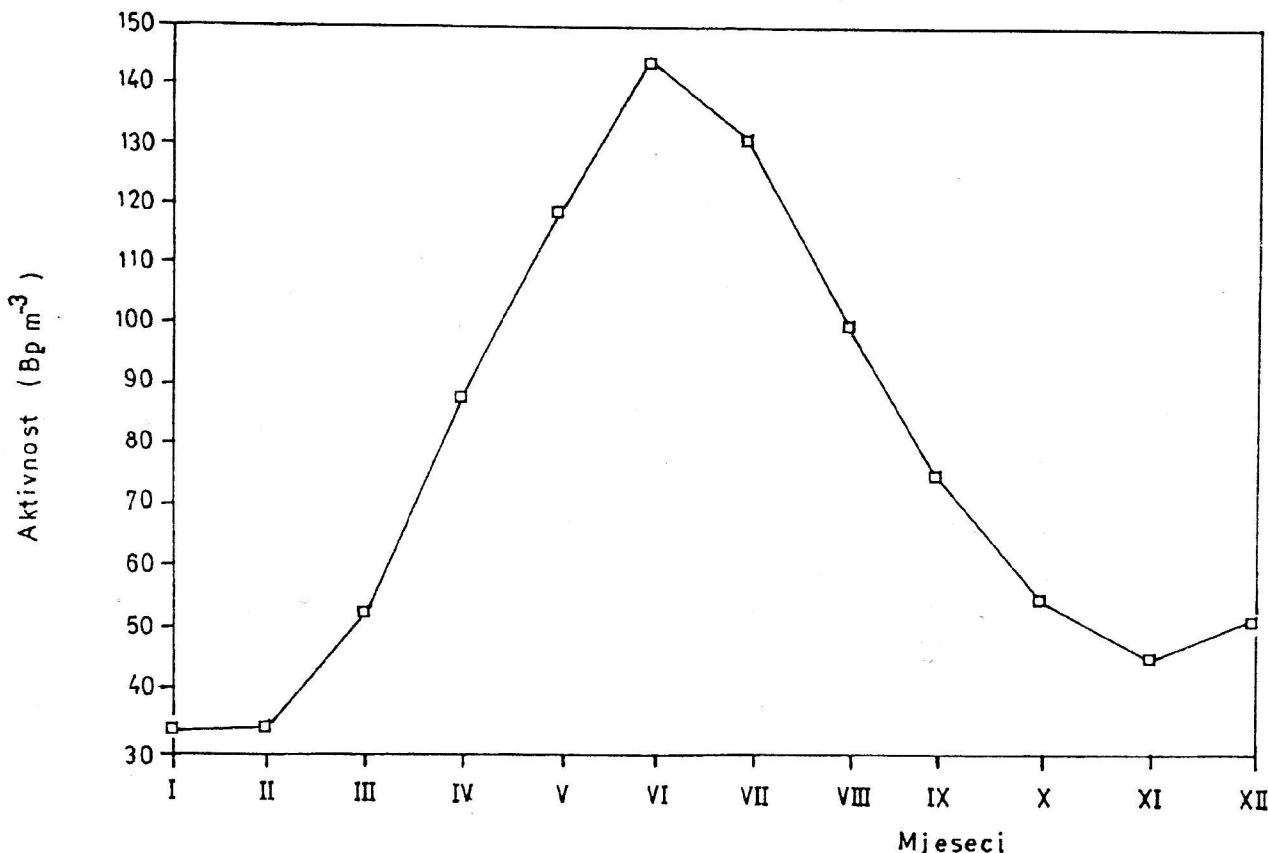
ne samo 0.71 godina. To ukazuje na različite mehanizme unošenja radioaktivnog materijala u atmosferu. Eksplozijama nuklearnog oružja radioaktivni materijal unosi se u više slojeve atmosfere (stratosferu), a minimalno vrijeme boravka radioaktivnog materijala unešenog u stratosferu je 2 godine (UNSCEAR 1982). Eksplozijom u nuklearnom reaktoru u Černobilju (26 travanj 1986. godine) radioaktivni materijal dospio je tek manjim dijelom do stratosfere, a većina se zadržala u troposferi, gdje je vrijeme boravka reda veličine nekoliko mjeseci.

Aktivnosti ^{137}Cs u oborinama su u prosincu 1990. godine bile još uvijek znatno više nego u pred-Černobiljskom periodu.

4. Proljetni porast aktivnosti u radioaktivnim oborinama i zraku

Sezonski meteorološki fenomeni uslijed kojih dolazi do miješanja zračnih masa između stratosfere i troposfere dovode do proljetnog porasta aktivnosti radioaktivnih oborina (UNSCEAR 1982). Na slici 2. prikazane su prosječne mjesečne aktivnosti ^{137}Cs u oborinama u periodu od 1965. do 1990. godine.

Udio (frakcija) ukupne aktivnosti koju oborine isperu iz atmosfere ovisi o lokalnim meteorološkim uvjetima, te je uočena povezanost između visine oborina i aktivnosti oborina. Koeficijent korelacije između te dvije veličine iznosi $r = 0.71$.



Sl. 2. Prosječne mjesečne aktivnosti ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama u Zagrebu u periodu od 1965. do 1990. godine.
Fig. 2. Mean monthly ^{137}Cs fallout activities in Zagreb in the period 1965 - 1990.

5. Brzina depozicije ^{137}Cs

Uz poznati suhi depozit i poznatu srednju aktivnost ^{137}Cs u zraku u nekom razdoblju može se procijeniti brzina depozicije, empirička konstanta koja ima dimenziju brzine. Kinetika taloženja različitih radionuklida procesima suhe depozicije, te kontaminacija zemljišta i vegetacije se u radio-ekološkim procjenama računaju koristeći koncept brzine depozicije.

Brzina akumulacije nataloženog materijala na lokaciji (x,y) , odnosno tok F , dana je produktom koncentracije u zraku $\chi(x,y,z,t)$ i brzine depozicije, v_g (Peterson 1983):

$$F = \frac{dC_A(x,y,t)}{dt} = v_g \chi(x,y,z,t) \quad (3)$$

$C_A(x,y,t)$ je površinska koncentracija u Bqm^{-2} , odnosno ukupni površinski depozit

(depozicija). Integriranjem jednadžbe (3) dobiva se izraz:

$$v_g = \frac{C(x,y,t)}{\int \chi(x,y,z,t) dt} \quad (4)$$

Koncentracije ^{137}Cs u zraku mjerene su u periodu svibanj 1986 - prosinac 1990. godine u Zagrebu. U tom periodu ($T = 56$ mjeseci, odnosno 1705 dana) prosječna mjesečna aktivnost iznosila je $0.015526 \text{ Bqm}^{-3}$. Stoga je prosječna integrirana aktivnost u tom razdoblju bila:

$$\begin{aligned} \bar{A} &= 0.015526 \text{ Bqm}^{-3} \cdot 1705 \text{ d} \cdot 86400 \text{ sd}^{-1} = \\ &= 2287166 \text{ Bqm}^{-3} \text{ s} \end{aligned} \quad (5)$$

Mjerenja su pokazala da je u Zagrebu ukupni površinski depozit ^{137}Cs u istom razdoblju bio $C_A(T) = 8107.9 \text{ Bqm}^{-2}$. Kako suhi depozit iznosi oko 10 % ukupnog depozita

(Thein et. al. 1980; Aarkrog, 1979), tada je brzina depozicije:

$$v_g = \frac{8107.9 \text{ Bqm}^{-2} \cdot 0.1}{2287166 \text{ Bqm}^{-3}\text{s}} = 3.5 \cdot 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \quad (6)$$

To se dobro slaže (isti red veličine) s literaturnim podacima brzine depozicije od $6 \cdot 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$ (Monte, 1991). Neznatna razlika može se pripisati specifičnostima mjernih mjesta za koja su depozicije određivane.

6. Omjer aktivnosti ^{134}Cs : ^{137}Cs u oborinama

^{134}Cs (vrijeme poluraspada 2.06 godina) u nuklearnim eksplozijama ne nastaje u značajnijim količinama, budući da je nuklid (^{134}Xe) iz koje bi beta raspadom bio proizveden ^{134}Cs stabilan. Međutim, zbog dugog vremena ozračivanja goriva u nuklearnim reaktorima (tipično vrijeme koje pojedina goriva šipka proboravi u reaktoru iznosi oko 3 godine) nastaje stabilni ^{133}Cs iz kojeg zahvatom neutrona u značajnim količinama nastaje ^{134}Cs . Stoga do nesreće u Černobilju ^{134}Cs nije bio prisutan u okolišu. Inventar ^{137}Cs u Černobiljskom reaktoru iznosio je $2.9 \cdot 10^{17} \text{ Bq}$, a ^{134}Cs $1.9 \cdot 10^{17} \text{ Bq}$ (IAEA, 1986). U atmosferu je nakon višekratnih eksplozija i požara koji su potom uslijedili oslobođeno 13 % ukupnog reaktorskog inventara ^{137}Cs i 10 % ^{134}Cs (IAEA, 1986). To je bilo više od 3 % radiocezija oslobođenog u svim atmosferskim nuklearnim eksplozijama do tada. Stoga je u svibnju 1986. godine teorijski omjer aktivnosti ^{134}Cs : ^{137}Cs u okolini Černobiljskog reaktora iznosio:

$$R(t) = \frac{0.10 \cdot 1.9 \cdot 10^{17}}{0.13 \cdot 2.9 \cdot 10^{17}} \approx 0.5 \quad (7)$$

U Hrvatskoj je 1986. godine približno taj omjer (0.5) zabilježen ne samo u uzorcima oborina i zraka, nego i u uzorcima riječne i cisternske vode (Franić, 1992), kao i mora (Franić, 1993). To je potvrda da ^{134}Cs i ^{137}Cs imaju u okolišu gotovo identična svojstva, za razliku od nekih drugih radionu-

klida koji se ovisno o kemijskoj ili fizičkoj formi u atmosferi, odnosno općenito u okolišu različito ponašaju (tricij, stroncij itd.). Kako je vrijeme poluraspada ^{137}Cs mnogo veće (30.14 godina) od vremena poluraspada ^{134}Cs , omjer aktivnosti ^{134}Cs : ^{137}Cs se uslijed radiološkog raspada kasnije smanjivao.

Omjer aktivnosti ^{90}Sr : ^{137}Cs koji je do Černobiljske nesreće bio prilično konstantan u gotovo svim uzorcima iz okoliša, a naročito u oborinama i moru, bio je najveći u samoj okolini Černobiljske nuklearne elektrane, a na udaljenosti 1000 km atmosferskim transportom opao je za cijeli red veličine (Aarkrog, 1988). Omjer aktivnosti ^{90}Sr : ^{137}Cs zabilježen u oborinama u Zagrebu (svibanj 1986) iznosio je 0.036. Za usporedbu, krajem travnja 1986. godine u zraku u Kievu iznosio je 0.36, a u zraku u Danskoj 0.024 (Aarkrog, 1988).

7. Zaključak

Nakon prestanka većih atmosferskih pokusa s nuklearnim oružjem (moratorij koji su potpisale sve članice UN proglašen je 1962. godine) radioaktivnost ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama eksponencijalno pada. Uslijed nuklearne nesreće u Černobilju (26. travnja 1986. godine) ponovo dolazi do značajnog porasta aktivnosti.

Praćenjem godišnjeg toka aktivnosti u oborinama i zraku zabilježeni su značajni porasti aktivnosti u proljeće odnosno rano ljeto, koji se mogu objasniti meteorološkim fenomenima.

Vrijeme boravka ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama ovisi o mehanizmu kojim je cezij dospio u atmosferu (atmosferski testovi nuklearnog oružja ili eksplozija nuklearnog reaktora u Černobilju). Brzina depozicije ^{137}Cs u razdoblju poslije Černobiljske nesreće iznosi $3.5 \cdot 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$.

^{134}Cs , budući da zbog prirode fisijskih procesa ne nastaje u nuklearnim eksplozijama (koje se zbivaju u milisekundama), ali se u značajnijim količinama nalazi u nuklearnim reaktorima, nije bio prisutan u okolišu sve do nesreće nuklearnog reaktora u Černobilju. Izotopi cezija ^{134}Cs i ^{137}Cs se u okolišu ponašaju gotovo identično, tako da nisu selektivno uklanjani iz radioaktivnog materijala pri

atmosferskom transportu od Černobilja do mjesta depozicije, na vrlo velikim udaljenostima.

Literatura:

- Aarkrog, A., 1979: Environmental Studies on Radioecological Sensitivity and Variability with Special Emphasis on the Fallout Nuclides ^{90}Sr and ^{137}Cs , Risø National Laboratory, DK-4000 Roskilde, Denmark.
- Aarkrog, A., 1988: The Radiological Impact of the Chernobyl Debris Compared with that from Nuclear Weapons Fallout, *J. Environ. Radioactivity*, 6, 151-162.
- Franić, Z., Maračić, M. i Bauman, A., 1992: Radioaktivna kontaminacija cisternskih voda duž hrvatske obale Jadranskog mora, *Arhiv za higijenu rada i toksikologiju*, 43. (U tisku)
- Franić, Z. i Bauman, A., 1993: Radioactive contamination of the Adriatic Sea by ^{90}Sr and ^{137}Cs . *Rad prihvaćen za tisak u časopisu Health Physics*, 64.
- International Atomic Energy Agency (IAEA) 1986: Summary Report on the Post-Accident Review Meeting on the Chernobyl Accident. Safety Series No. 75-INSAG-1. Vienna, 34 pp.
- Monte, L., 1991: Analysis of Radiocontamination Data, Collected in Italy Following the Chernobyl Accident, for the Evaluation of Transfer Parameters of Radionuclides in the Deposition - Vegetation - Cow - Milk Pathway, *J. Environ. Radioactivity*, 14, 317-329.
- Nelder J.A. and Mead R., 1965: A Simplex Method for Function Minimization, *Computer Journal*, 7, 308-313.
- Peterson H.T., 1983: Terrestrial and Aquatic Food Chain Pathways, Radiological Assessment, a Textbook on Environmental Dose Analysis, Edited by J. E. Till, NUREG, Washington, 5-12 pp.
- Thein, M., Ballestra S., Yamato A. and Fukai R., 1980: Delivery of Transuranic Elements by Rain to the Mediterranean Sea, *Geochimica Acta*, 44, 1091-1097.

Z. Franić: ^{137}Cs u radioaktivnim oborinama u Zagrebu

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) 1982: Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, 1982 Report to the General Assembly, With Annexes, United Nations, New York.

Summary

Investigations of ^{137}Cs fallout activity have been carried out in Zagreb, the capital of the Republic of Croatia, since 1965. An exponential decline in radioactivity followed the nuclear moratorium. After the nuclear accident at Chernobyl, in the former USSR, high radioactivity levels have been detected again. The ^{137}Cs fallout activities were fitted to exponential functions and, from these regressions residence times of ^{137}Cs in the atmosphere for the respective periods were calculated. The latter reflect the mechanism of ^{137}Cs release to the atmosphere (atmospheric nuclear weapon tests or the nuclear accident at Chernobyl). The spring peak of radioactivity in fallout is generally attributed to meteorological phenomena that give rise to substantial air interchanges between the stratosphere and the troposphere. ^{137}Cs deposition velocity, an empirical rate constant containing units of velocity (distance/time) was calculated for the period 1986 - 1990. Another caesium isotope, ^{134}Cs , which is not produced by nuclear weapon testing was not determined in the Croatian environment before 1986. However, due to long irradiation times of nuclear reactor fuels, it is present in reactor fission product inventories. Thus, in May 1986, as a consequence of the Chernobyl nuclear accident, ^{134}Cs was found in the environment in Croatia for the first time. It is considered that the two isotopes, ^{134}Cs and ^{137}Cs , have undergone no selective removal in transit between the accident site at Chernobyl and Croatia as their activity ratio has not been altered.