

RADIOAKTIVNA KONTAMINACIJA CISTERNSKIH VODA DUŽ HRVATSKE OBALE JADRANSKOG MORA

Z. Franić, M. Maračić i A. Bauman

*Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada Sveučilišta
u Zagrebu, Zagreb, Hrvatska*

Primitljeno 13. XI. 1991.

Radioaktivna kontaminacija cisternskih voda ^{90}Sr , ^{134}Cs i ^{137}Cs mjeri se od 1968. godine duž hrvatske obale Jadranskog mora. Nakon prestanka većih pokusa s nuklearnim oružjem u atmosferi, radioaktivnost eksponencijalno pada. Poslije nuklearne nesreće u Černobilju opet dolazi do značajnog porasta radioaktivnosti. Srednje vrijeme boravka ^{90}Sr u cisternskim vodama prije i poslije Černobilja upućuje na način kojim je stroncij dospio u atmosferu (pokus nuklearnog oružja u stratosferi, odnosno eksplozije u černobiljskom reaktoru kojima je radioaktivni materijal dospio samo do troposfere). Za pretčernobiljsko razdoblje srednje vrijeme boravka ^{90}Sr u cisternskim vodama od oko 10 godina slično je srednjem vremenu boravka u radioaktivnim oborinama. Postčernobiljski omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ se smanjuje, ali još nije dosegao pretčernobiljske vrijednosti ($\approx 1,6$). Vremenski ovisan omjer aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ reflektira reaktorski inventar tih radionuklida. Godišnja doza za kritičnu odraslu populaciju primitljena od ^{90}Sr , ^{134}Cs i ^{137}Cs konzumacijom cisternske vode procijenjena je na nekoliko postotaka doze od prirodnog zračenja.

Ključne riječi: betaaktivnost, cezij-134, cezij-137, gamaspektrometrijska analiza, radioaktivne oborine, radionuklidi, stroncij-90.

Testovi nuklearnog oružja u atmosferi, osobito intenzivni šezdesetih godina, još su i danas uzrokom radioaktivne kontaminacije okoliša. Radioaktivni materijal taloži se iz atmosfere tzv. radioaktivnim oborinama. Taj materijal može se taložiti i za vremena bez oborina (kiše, snijega itd.) te se naziva suhim radioaktivnim oborinama, za razliku od mokrih radioaktivnih oborina.

Među radionuklidima podrijetlom iz nuklearnih eksplozija osobiti rizik zbog svojih fizikalnih, biokemijskih i radiotoksičnih karakteristika predstavljaju fisijski produkti ^{90}Sr i ^{137}Cs . Osobito je opasan ^{90}Sr koji je kemijski sličan kalciju pa ga ljudski organizam lako resorbira (1, 2), što može izazvati fatalne posljedice.

Cisterne kao umjetni rezervoari za sakupljanje i spremanje kišnice odlični su kumulativni skupljači radioaktivnog materijala. Kako kišnica cisternskih voda ima vrlo malo kalcija, ^{90}Sr u cisternskim vodama predstavlja veliku potencijalnu opasnost za populaciju koja o tim vodama ovisi. U radu su prikazane proračunate doze zbog nazočnosti ^{90}Sr , ^{134}Cs i

^{137}Cs unesenih konzumacijom cisternskih voda. Toksikološka kontrola, kao i kontrola radioaktivnosti cisternskih voda potrebna je i zbog toga što su cisterne jedini izvor pitke vode u slučaju kontaminacije vodovodne mreže, elementarnih nepogoda ili rata.

Mjerenja aktivnosti ^{90}Sr vrlo su komplicirana i dugotrajna zbog prethodne radiokemijske obrade. Kako je omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ prije černobiljske nesreće (26. travnja 1986) u uzorcima iz okoliša bio vrlo stabilan, bilo je uobičajeno da se aktivnost ^{90}Sr preračunava iz aktivnosti ^{137}Cs koja se može relativno jednostavno odrediti gamaspektrometrijski. Npr. za morsku vodu aktivnost ^{137}Cs dijelila se s 1,5 da bi se dobila aktivnost ^{90}Sr (3, 4).

Podaci o aktivnosti ^{90}Sr u uzorcima iz okoliša neposredno poslije černobiljske nesreće vrlo su rijetki (5), kako u europskim tako i u svjetskim okvirima. Rekonstruiranje aktivnosti ^{90}Sr iz ^{137}Cs je otežano, ako ne i nemoguće, budući da se omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ poremetio, a nedostaje i baza podataka o izmjerenim vrijednostima ^{90}Sr u uzorcima kako bi se odredio novi omjer. U ovom radu bit će stoga prikazano i kako se kretao omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ nakon Černobilja.

Usto, prvi put (nakon intenzivnih atmosferskih pokusa nuklearnog oružja) u uzorcima iz okoliša izmjerene su aktivnosti ^{134}Cs . Izučavanje izotopskog omjera aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ pruža uvid u frakcije kojima su ti radioizotopi ispušteni iz černobiljskog reaktora te eksperimentalno potvrđuje da u okolišu ta dva izotopa cezija imaju identične osobine.

MATERIJAL I METODE

Uzorci cisternskih voda uzimani su jednom godišnje u Balama, Brseču, Mejama, Barić Dragi, Rovanjskoj, Brelima, Dolima i Komaju te povremeno u Puntu, Pagu i Marini. No u pojedinim godinama nije bilo moguće uzeti uzorke iz svih kontroliranih cisterni. Uzorci morske vode uzimani su dva puta godišnje, u proljeće i jesen, u Rovinju, Rijeci, Splitu i Dubrovniku.

Do 1968. godine u cisternskim vodama ispitivala se ukupna betaaktivnost (6, 7). Od 1968. godine ispituje se stroncij i povremeno cezij, a od nesreće u Černobilju redovito se obavlja i gamaspektrometrija cisternskih voda (8).

U Zadru i Zagrebu se još od 1963. uzimaju mjesečni uzorci oborina za analizu ^{90}Sr i ^{137}Cs .

^{90}Sr se analizira Bryantovom metodom detaljno opisanom u literaturi (9) uz određene modifikacije (10). Za analizu se uzima pet litara vode i uz dodatak stroncijeva nosača i dušične kiseline upari na mali volumen. Čišćenjem se odstrane sve nepotrebne primjese. Pri određivanju stroncija veliku teškoću zadaje kalcij zbog njihovih sličnih kemijsko-fizikalnih karakteristika. Ovom metodom se zbog različite topljivosti u dimećoj dušičnoj kiselini djelotvorno odvoji kalcij od stroncija. U čistu otopinu stroncija doda se nosač ^{90}Y (stabilni Y) i ostavi 16 dana da se stvori radiokemijska ravnoteža zbog radioaktivnog raspada ^{90}Sr u ^{90}Y . Nakon postignute radioaktivne ravnoteže radiokemijskim metodama istaloži se itrij kao Y-oksalat i mjeri na antikoincidentnom betabrojaču. Razlog što se mjeri aktivnost ^{90}Y , a ne ^{90}Sr jest to što ^{90}Sr ima nisku energiju betazračenja.

Za gamaspektrometrijsku analizu uzima se 5–10 litara vode i upari na volumen 1 litre. Gamaspektrometrijska mjerenja obavljana su na sistemu koji se sastoji od ORTEC Ge(Li) detektora s niskim osnovnim zračenjem (FWHM 1,82 keV na 1,33 MeV) povezanim s 4096-kanalnim analizatorom za skupljanje podataka i osobnim računalom za obradu spektara.

Kalibracija efikasnosti obavljena je pomoću radioaktivnih standarda Međunarodne agencije za atomsku energiju (IAEA) i Svjetske zdravstvene organizacije (WHO). Uzorci

su mjereni u Marinellievim posudama volumena 1 litre koje su stavljane direktno na detektor.

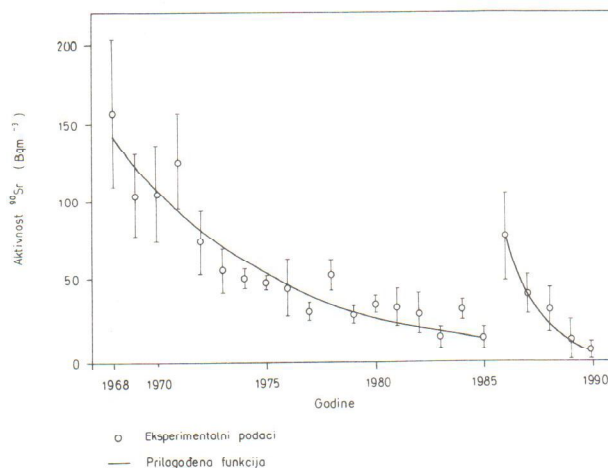
Vrijeme brojenja, ovisno o aktivnosti uzoraka, bilo je 10000–80000 sekundi.

Za funkcijsku minimalizaciju (traženje prilagođene funkcije koja opisuje eksperimentalne podatke) primijenjena je metoda Simplex (11) i odgovarajući Fortran programi. Greške srednjeg vremena boravka računane su analizom Monte Carlo (12). Svaka se vrijednost varira u intervalu $A \pm \sigma$ (gdje je A aktivnost, a σ je pripadna standardna devijacija) te se traži prilagođena funkcija. Pogreške su računane iz 100 simulacija Monte Carlo.

REZULTATI I RASPRAVA

Vrijeme boravka ^{90}Sr i ^{137}Cs u cisternskim vodama

Na slici 1. prikazane su prosječne specifične aktivnosti ^{90}Sr u cisternskim vodama i pripadajuće standardne devijacije za razdoblje 1968–1990. godina. Iako je prosjek računat iz desetak uzoraka od Istre do Dubrovnika, relativna pogreška nikada nije premašila 30%. Aktivnost ^{90}Sr u cisternskim vodama opada eksponencijalno. Uzroci porasta aktivnosti 1970. i 1978. godine u odnosu na prethodne godine mogu se objasniti francuskim i kineskim nuklearnim eksplozijama (7,72 i 0,06 Mt). Godine 1986. aktivnost je opet znatno porasla zbog nuklearne nesreće u Černobilju, kada je oslobođeno ukupno 8×10^{15} Bq ^{90}Sr u atmosferu (13).



Slika 1. Prosječna aktivnost ^{90}Sr u cisternskim vodama u razdoblju od 1968. do 1990. godine

Aktivnost ^{137}Cs (tablica 1) u cisternskim vodama također eksponencijalno pada.

Naglo smanjivanje aktivnosti cezija 1988. godine u odnosu prema 1987. godini (oko 15 puta) upućuje na to da se najveći dio cezija istaložio iz atmosfere na tlo tijekom dvije godine nakon nesreće.

Standardne devijacije su mnogo veće nego kod ^{90}Sr , što upućuje na nejednoliku depoziciju ^{137}Cs u odnosu na ^{90}Sr . Razlog je u tome što su refraktorne komponente černo-

Tablica 1.

Prosječna aktivnost ^{137}Cs u cisternskoj vodi u razdoblju od 1986. do 1990. godine

Godina	Aktivnost
1986.	1479,5 ± 665,8
1987.	1246,7 ± 496,2
1988.	77,5 ± 28,4
1989.	48,0 ± 19,2
1990.	45,2 ± 15,8

biljskog radioaktivnog materijala (npr. ^{90}Sr) deponirane na tlo bliže mjestu same nesreće, i to u roku od samo nekoliko tjedana. Lebdljivije komponente (^{134}Cs , ^{137}Cs itd.) su zbog globalnih disperzijskih procesa opstale u atmosferi mnogo duže, što je u skladu s drugim opažanjima (14).

Funkcijskom minimalizacijom eksperimentalni podaci aktivnosti ^{90}Sr i ^{137}Cs prilagođeni su na eksponencijalnu funkciju:

$$N_i(t) = N_i(0)e^{-k_i t} \quad (1)$$

gdje su:

$N_i(t)$ koncentracija radionuklida i (^{90}Sr ili ^{137}Cs) u cisternskim vodama u vrijeme t ,

$N_i(0)$ koncentracija radionuklida i u cisternskim vodama u vrijeme $t=0$ (1968. odnosno 1986. godina),

t proteklo vrijeme,

k_i konstanta karakteristična za radionuklid i .

Prema analogiji sa zakonom radioaktivnog raspada:

$$T_{ef}(i) = \frac{\ln 2}{k_i} \quad (2)$$

$T_{ef}(i)$ je efektivno opaženo vrijeme boravka ^{90}Sr odnosno ^{137}Cs u cisternskoj vodi, odnosno vrijeme potrebno da koncentracija radionuklida i padne na 1/2 početne vrijednosti.

Kako je efektivno opaženo vrijeme boravka kombinacija radiološkog i neradiološkog vremena, ako se u obzir uzme i radioaktivni raspad (radiološko vrijeme poluraspada iznosi $T_r(^{90}\text{Sr}) = 29$ godina i $T_r(^{137}\text{Cs}) = 30$ godina), srednje vrijeme boravka radionuklida i u cisternskim vodama, $T_s(i)$, dano je relacijom:

$$\frac{1}{T_s(i)} = \frac{\ln(2)}{T_{ef}(i)} - \frac{\ln(2)}{T_r(i)} \quad (3)$$

iz jednadžbe (3) uvažavajući (2) slijedi:

$$T_s(i) = \frac{1}{k(i) - \lambda(i)} \quad (4)$$

gdje je $\lambda(i)$ konstanta radioaktivnog raspada radionuklida i .

Srednje vrijeme boravka ^{90}Sr u cisternskim vodama u razdoblju 1968–1985. godine računano iz prosječnih vrijednosti aktivnosti ^{90}Sr u cisternskim vodama iznosi $10,6 \pm 0,4$ godine, a za razdoblje 1986–1990. godine iznosi samo $1,8 \pm 0,1$ godinu. To upućuje na različite načine unošenja radioaktivnog materijala u atmosferu. Atmosferskim testovima nuklearnog oružja radioaktivni materijal unosi se u više slojeve atmosfere (stratosferu), a minimalno vrijeme boravka radioaktivnog materijala unesenog u više slojeve stratosfere je dvije godine (5). Serijom eksplozija popraćenih požarima u nuklearnom reaktoru u Černobilju radioaktivni materijal dospio je tek do troposfere, gdje je vrijeme boravka reda veličine nekoliko mjeseci. Individualna vremena boravka u različitim cisternama računana istom metodom za razdoblje 1968–1985. godine iznose od 10,2 godine u cisterni Komaj do vrijednosti od 14,2 godine, koja najviše odstupa od prosjeka, za cisternu u Rovanjskoj. Razlog takve razlike je u nejednolikom režimu trošenja vode. Otkad je u mnoga mjesta uveden vodovod, cisternska voda se troši uglavnom za zalijevanje, odnosno kao tehnička voda (npr. cisterna Komaj kod Dubrovnika), dok se u nekim slučajevima vrlo slabo troši (cisterna Rovanjaska kod Zadra). Nadalje, visina oborina je vrlo različita u području srednjeg i južnog Jadrana. Dok je prosječna godišnja visina oborina u Zadru 800 mm, u Dubrovniku iznosi 1300 mm. Uz nejednoliki režim trošenja vode i različite količine oborina utječu na brzinu izmjene vode u cisternama.

Za razdoblje 1986–1990. godine vrijeme boravka ^{137}Cs u cisternskim vodama iznosi $1,5 \pm 0,3$ godine, nešto manje nego za ^{90}Sr . Za usporedbu, vrijeme boravka ^{90}Sr u radioaktivnim oborinama u Zagrebu u razdoblju 1963–1988. godina iznosilo je 8,7 godina (15), a u razdoblju 1968–1985. godina iznosi 9,3 godine u Zadru te također 9,3 godine u Zagrebu. Korelacija između aktivnosti ^{90}Sr u radioaktivnim oborinama u Zadru i prosječne aktivnosti cisternskih voda je vrlo dobra, s koeficijentom korelacije $r=0,85$.

Na kraju treba napomenuti da bi u slučaju značajnijih kontaminacija cisternskih voda stroncijem dodavanje kalcija takvim vodama umanjilo unošenje stroncija u organizam.

Omjer $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ u cisternskoj vodi

Sve do nuklearne nesreće u Černobilju omjer aktivnosti ^{137}Cs i ^{90}Sr u svim uzorcima iz okoliša, pa tako i u radioaktivnim oborinama bio je relativno konstantan i iznosio je 1–2 (1, 2, 7). Omjer iz radioaktivnih oborina prenosio se u oceane i mora. Npr. u Jadranskom moru u razdoblju 1978–1985. godine iznosio je $1,59 \pm 0,02$ (16) što se odlično slaže s vrijednosti 1,5–1,6 utvrđene za ostala svjetska mora (3, 4). Stoga je očito da taj isti omjer vrijedi i za cisternsku vodu u pretčernobiljskom razdoblju. Nakon nuklearne nesreće u Černobilju 1986. godine, velike količine cezija oslobodile su se u atmosferu (13) te je koncentracija cezija u radioaktivnim oborinama, a stoga i u ostalim uzorcima iz okoliša znatno porasla u odnosu prema prijašnjim godinama.

Na temelju podataka o radioaktivnosti životne sredine u Republici Hrvatskoj (7) može se izračunati da omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 1986. godine u cisternskim vodama iznosi 30. Otada je u padu, ali se nije vratio na pretčernobiljske vrijednosti.

Na tablici 2. prikazan je omjer aktivnosti u cisternama i moru od 1986. do 1990. godine. Godine 1986. omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ je mnogo veći u moru nego u cisternskim vodama budući da se u moru, kao otvorenom sustavu, za razliku od cisterni, ^{90}Sr mnogo brže razrijedio. Omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ se tek 1990. godine u moru približio pretčernobiljskim vrijednostima ($\approx 1,6$), dok je u cisternskoj vodi još uvijek dvostruko veći.

Tablica 2.

Prosječni omjer aktivnosti $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ u cisternskoj vodi i moru u razdoblju od 1986. do 1990. godine

Godina	Cisterne	More
1985.		1,6 ± 0,0
1986.	30,0 ± 17,1	92,2 ± 58,3
1987.	77,7 ± 53,9	57,5 ± 25,0
1988.	2,9 ± 1,3	6,4 ± 2,1
1989.	3,3 ± 2,5	2,1 ± 0,2
1990.	3,2 ± 2,0	1,7 ± 0,2

Omjer $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ u cisternskoj vodi

^{134}Cs (vrijeme poluraspada 2,06 godine) nije bio prisutan u okolišu 1986. godine, budući da u atmosferskom testovima nuklearnog oružja ne nastaje u iole značajnijim količinama. Međutim, prisutan je u inventaru nuklearnih reaktora, tako da je aktivnost cezija oslobođena u atmosferu nakon eksplozije u reaktoru nuklearne elektrane u Černobilju bila $3,7 \times 10^{16}$ Bq ^{137}Cs (13% ukupnog ^{137}Cs u reaktoru) i $1,9 \times 10^{16}$ Bq ^{134}Cs (10% reaktorskog inventara ^{134}Cs) (13). To je bilo više od 3% radiocezija oslobođenog u okoliš svim atmosferskim nuklearnim eksplozijama dotad. Stoga je u svibnju 1986. godine (neposredno nakon černobiljske nesreće) omjer aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ iznosio $1,9 \times 10^{16} / 3,7 \times 10^{16} \approx 0,5$. Približno taj omjer zabilježen je i u mnogim uzorcima iz okoliša (med, meso itd.) (17, 18).

Kako je vrijeme poluraspada ^{137}Cs mnogo veće (30,14 godina) od vremena poluraspada ^{134}Cs , omjer aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ se zbog radioaktivnog raspada smanjuje od početne vrijednosti (0,5) prema relaciji:

$$R(t) = \frac{1,9 \times 10^{16}}{3,7 \times 10^{16}} \times e^{\ln(2) \times t \times (1/t_1 - 1/t_2)} \quad (5)$$

gdje su:

- R(t) vremenski ovisan omjer aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$,
- t vrijeme proteklo od černobiljske nesreće,
- t_1 i t_2 fizička vremena poluraspada ^{137}Cs i ^{134}Cs .

Tablica 3.

Teorijski i eksperimentalno izmjereni omjer aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ u cisternskim vodama

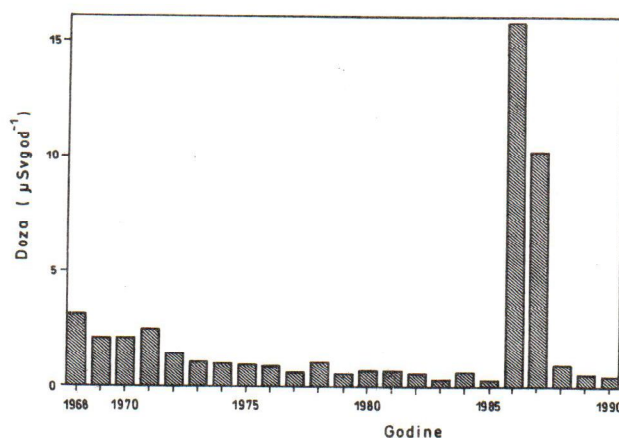
Godina	Teorijski omjer	Izmjereni omjer
1986.	0,50	0,47 ± 0,23
1987.	0,37	0,38 ± 0,20
1988.	0,27	0,26 ± 0,17
1989.	0,20	0,21 ± 0,15
1990.	0,14	0,12 ± 0,07

Na tablici 3. prikazane su vrijednosti omjera aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, izračunane po relaciji (5), i to na dan skupljanja uzoraka, i eksperimentalno izmjerene vrijednosti u cisternskim vodama.

Slaganje je vrlo dobro, što je još jedna potvrda da ^{134}Cs i ^{137}Cs imaju u okolišu identične osobine, za razliku od nekih drugih radionuklida koji se ovisno o kemijskoj ili fizičkoj formi u okolišu različito ponašau (npr. tricij).

Dozimetrija

Na slici 2. prikazana je doza u μSv za odraslog čovjeka koji popije jednu litru cisternske vode na dan (19). Dozni konverzijski faktori su $1,4 \times 10^{-8}$ za ^{137}Cs , $2,0 \times 10^{-8}$ za ^{134}Cs i $3,3 \times 10^{-8}$ SvBq^{-1} za ^{90}Sr (20). Pri proračunima doza aktivnost ^{137}Cs za razdoblje 1968–1986. godine računana je množenjem aktivnosti ^{90}Sr s faktorom 1,6 (aktivnosti ^{134}Cs u okolišu su u tom razdoblju bile zanemarive). Za razdoblje 1986–1990. aktivnost je računana množenjem



Slika 2. Ukupna doza koju bi primio odrasli čovjek zbog ozračivanja ^{90}Sr , ^{134}Cs i ^{137}Cs u razdoblju od 1968. do 1990. godine pijuci jednu litru cisternske vode na dan

izmjerenih aktivnosti ^{90}Sr , ^{134}Cs i ^{137}Cs s konverzijskim faktorima. Ukupna godišnja doza 1986. godine ($15,8 \mu\text{Sv god}^{-1}$) približno je jednaka ukupnoj dozi 1964. godine ($16,5 \mu\text{Sv god}^{-1}$), nakon vrlo intenzivnih atmosferskih nuklearnih pokusa.

ZAKLJUČNE PRIMJEDBE

Analiza radioaktivnosti cisternskih voda kao kumulativnih uzorkivača oborinskih voda ima značajnu vrijednost pri procjenjivanju stanja radioaktivne kontaminacije okoliša, i to osobito ^{90}Sr , ali i izotopima cezija.

Vrijeme boravka ^{90}Sr u cisternskim vodama ovisi o načinu kojim je stroncij dospio u atmosferu (atmosferski testovi nuklearnog oružja ili eksplozija nuklearnog reaktora u Čer-

nobilju). Srednje vrijeme boravka ^{90}Sr u cisternskim vodama u pretčernobiljskom razdoblju iznosi oko 10 godina, neznatno više nego srednje vrijeme boravka u oborinama, u istom razdoblju.

Vremenski ovisan omjer aktivnosti $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ reflektira postotak ispuštanja i inventar tih radionuklida u černobiljskom reaktoru.

Doze zbog konzumacije isključivo cisternske vode su i nakon černobiljske nesreće vrlo niske te predstavljaju oko 1/100 doze primljene prirodnim zračenjem. Kako su cisternske vode još i danas za pojedine populacije jadranskih regija jedini izvor ne samo tehničke već i pitke vode, potrebno je konstantno kontrolirati radioaktivnost kako bi se mogle procjenjivati doze koju te populacije ingestijom cisternske vode prime.

Zahvala – Zahvaljujemo suradnicima Odjela za zaštitu od zračenja Đuki Stampfu i Enisu Sokoloviću na obradi uzoraka i pomoći pri izradi ovog rada.

Praćenje radioaktivnosti cisternskih voda je dio šireg programa mjerenja radioaktivnosti životne sredine, na temelju ugovora s Ministarstvom zdravstva Republike Hrvatske.

LITERATURA

1. *International Commission for Radiation Protection, ICRP. Publication 11: A review of the radio-sensitivity of the tissues in bone.* Oxford: Pergamon Press, 1967.
2. Bauman, A. ^{90}Sr in the human bone. *Health Physics* 1977; 32: 318-20.
3. Volchok HL, Bowen VT, Folsom TR, Broecker WS, Schuert EA, Bien GS. Oceanic distributions of radionuclides from nuclear explosions. In: *Radioactivity in the Marine Environment.* Prepared by the Panel on Radioactivity in the Marine Environment of the Committee on Oceanography and National Research Council. Washington: National Academy of Sciences 1971:42-89.
4. Kupferman SL, Livingston HD, Bowen VT. A mass balance for ^{137}Cs and ^{90}Sr in the North Atlantic Ocean. *J Marine Research* 1979;37:157-99.
5. *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR). Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, 1982 Report to the General Assembly, With Annexes.* New York: United Nations, 1982.
6. Bauman A, Franić N, Baumštark M. et al. The investigation of radioactivity levels in Croatian cistern waters. *Arh hig rada i toksikol* 1982;33:151-9.
7. Popović V. ur. *Radioaktivnost životne sredine u Jugoslaviji.* Beograd: Savezni komitet za rad, zdravstvo i socijalnu politiku, 1963-1967.
8. Bauman et al. Rezultati mjerenja radioaktivnosti životne sredine u Republici Hrvatskoj. Zagreb: Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada Sveučilišta u Zagrebu, 1968-1990.
9. Harley J. ur. *EML Procedures Manual, HASL-300 Environmental Measurements Laboratory.* New York: U.S. Department of Energy, 1972.
10. Bauman A. A Convenient method for the separation of yttrium-90 in sea-water. *Health Physics* 1974;26:472.
11. Nelder JA, Mead R. A simplex method for function minimization. *Computer Journal* 1966;7:308-16.
12. James, F. *Monte Carlo Theory and Practice,* CERN Data Handling Division, Geneva 1980.
13. *International Nuclear Safety Advisory Group. Summary Report on the Post-Accident Review Meeting on the Chernobyl Accident, Safety Series No. 75-INSAG-1.* Vienna: International Atomic Energy Agency 1986.
14. Aarkrog A. The radiological impact of the Chernobyl debris compared with that from nuclear weapons fallout. *J Environ Radioactivity* 1988;6:151-62.
15. Franić Z, Senčar J, Bauman A. Aktivnost ^{90}Sr u padavinama u Zagrebu. U: *Zbornik radova XV jugoslavenskog simpozija za zaštitu od zračenja.* Priština: Jugoslavensko društvo za zaštitu od zračenja, 1989;3:9-12.
16. Franić Z, Maračić M, Bauman A. Kretanje ^{90}Sr u Jadranskom moru. U: Milojević M, ur. *Zbornik radova Konferencije o aktuelnim problemima zaštite voda, Zaštita voda '89.* Rovinj: Jugoslavensko društvo za zaštitu voda, 1989;1:155-9.

17. Franić Z., Marović G., Bauman A. Kontaminacija meda radiocezijem. Pčela 1991; 110: 123-4.
18. Franić Z., Marović G., Seņčar J., Bauman A. Model ekskrecije radocezija iz mesa tovne junadi nakon nuklearne nesreće u Černobilju. Prehrambeno-tehnološka i biotehnološka revija 1989;27:155-8.
19. International Commission on Radiological Protection, ICRP. Publication 23. Report of the Task Group on Reference Man. Oxford: Pergamon Press 1974.
20. International Commission on Radiological Protection, ICRP. Publication 56. Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides. Oxford: Pergamon Press 1989.

Summary

RADIOACTIVE CONTAMINATION OF CISTERN WATERS ALONG THE CROATIAN COAST OF THE ADRIATIC SEA

Measurements of radioactive contamination of cistern waters with ^{90}Sr , ^{134}Cs and ^{137}Cs have been carried out along the Croatian coast of the Adriatic Sea. An exponential decline of radioactivity followed the moratorium on nuclear tests. After the nuclear accident at Chernobyl, high radioactivity levels were detected again. The pre-Chernobyl and the post-Chernobyl mean residence times of ^{90}Sr in cistern waters reflect the mechanism by which strontium was released to the atmosphere (atmospheric nuclear weapon tests conducted in the stratosphere or explosions in the Chernobyl nuclear reactor releasing radioactive material to the troposphere). For the pre-Chernobyl period, the mean residence time of ^{90}Sr in cistern waters was similar to that calculated for fallout, being approximately 10 years. The post-Chernobyl $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ activity ratio has been decreasing, but it has not yet reached the pre-Chernobyl values (≈ 1.6). The time-dependent $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio reflects the Chernobyl reactor inventory of these radionuclides. The annual dose for the critical adult population received from ^{90}Sr , ^{134}Cs and ^{137}Cs by consumption of cistern water was estimated to be a few percentages of the dose from natural background radiation.

Institute for Medical Research and Occupational Health University of Zagreb, Zagreb, Croatia.

Key terms: beta activity, caesium-134, caesium-137, gammaspectrometric analysis, radioactive fallout, radionuclides, strontium-90.