

Pregledni rad

¹⁴C AKTIVNOST U OKOLIŠU: ATMOSFERA I BIOSFERA

Ines KRAJCAR BRONIĆ, Bogomil OBELIĆ, Nada HORVATINČIĆ, Jadranka BAREŠIĆ
i Andreja SIRONIĆ

Institut Ruđer Bošković, Zagreb, Hrvatska

Primljeno u svibnju 2010.

Prihvaćeno u kolovozu 2010.

Prirodna ravnotežna ¹⁴C aktivnost u atmosferskom ugljikovu dioksidu i u biosferi narušena je na globalnoj razini ljudskom djelatnošću. Intenzivni termonuklearni atmosferski pokusi sredinom 20. stoljeća uzrokovali su naglo povišenje ¹⁴C aktivnosti u atmosferi na razinu gotovo dvostruko višu od prirodne, a nakon zabrane pokusa ¹⁴C aktivnost se smanjuje i danas je gotovo dosegla prirodnu ravnotežnu vrijednost. U ovom su radu prikazani rezultati praćenja ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂, godovima drveća i biološkim uzorcima na nekoliko karakterističnih lokacija na području Hrvatske i Slovenije. Globalne promjene ¹⁴C aktivnosti opažaju se i na "čistim" lokacijama u zaštićenim područjima. U urbanim sredinama opažaju se lokalni efekti sniženja ¹⁴C aktivnosti u atmosferi zbog povećanog izgaranja fosilnih goriva, što je posebno izraženo u zimskim mjesecima. U okolici nuklearne elektrane opaža se povišenje ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ za vrijeme i neposredno nakon izmjene gorivih elemenata, a ako se remont provodi početkom vegetacijskog razdoblja, tada se opaža povišena ¹⁴C aktivnost i u biljkama iz neposredne okolice.

KLJUČNE RIJEČI: CO₂, Hrvatska, nuklearna elektrana, remont, Slovenija, termonuklearni atmosferski pokusi

Radioaktivni izotop ugljika, ¹⁴C, nastaje u Zemljinj atmosferi reakcijom neutrona iz kozmičkog zračenja s jezgrama dušika ¹⁴N. Zajedno s drugim ugljikovim izotopima u obliku CO₂ ulazi u biološki i geokemijski prirodni ugljikov ciklus. U živim organizmima je uspostavljena ravnoteža između raspada radioaktivnog ugljika ¹⁴C i njegova nadoknađivanja asimilacijom ili prehranom. Nakon smrti nema više nadoknađivanja ¹⁴C, a proces radioaktivnog raspada se nastavlja, što čini osnovu za određivanje starosti biološkog materijala metodom radioaktivnog ugljika (1).

Prirodna ravnoteža ¹⁴C u atmosferi i biosferi narušena je ljudskim aktivnostima nakon druge polovice 19. stoljeća. Intenzivna uporaba fosilnih goriva (ugljen, nafta), koja ne sadržavaju ¹⁴C, uzrokovala je povišenje koncentracije CO₂ u atmosferi i sniženje ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂. S druge strane,

intenzivni atmosferski nuklearni pokusi sredinom 20. stoljeća uzrokovali su porast ¹⁴C aktivnosti u atmosferi na razinu gotovo dvostruko višu od prirodne (2, 3). Nakon zabrane nuklearnih pokusa te zbog izmjene ¹⁴C iz atmosfere s drugim spremnicima ugljika, pogotovo oceanom i biosferom, dolazi do pada atmosferske ¹⁴C aktivnosti s vremenom relaksacije od oko 16 godina (3) te je ona danas tek nešto viša od prirodne ravnotežne vrijednosti. Kratkotrajno povišenje atmosferske ¹⁴C aktivnosti, poznato u literaturi kao "¹⁴C bomb peak", omogućilo je da ¹⁴C postane obilježivač s pomoću kojega se mogu pratiti neki biološki i geokemijski procesi, pa se primjenjuje u različitim studijama kretanja ugljika u okolišu, kao i u forenzici i biomedicinskim istraživanjima.

¹⁴C aktivnost atmosfere odražava se u biljkama, budući da one prilikom fotosinteze koriste CO₂ iz atmosfere. Izmjerena ¹⁴C aktivnost u jednogodišnjim

biljkama ili godovima drveća tako odražava srednju vrijednost ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ za vrijeme vegetacijskog perioda. Ta se činjenica koristi za rekonstrukciju lokalne ¹⁴C aktivnosti u prošlosti mjerenjem ¹⁴C aktivnosti u godovima drveća. Usporedba ¹⁴C aktivnosti godova drveća starog do 12 500 godina i apsolutne starosti godova određene dendrokronologijom rabi se za kalibraciju izmjerenih ¹⁴C starosti (1).

Nuklearna postrojenja, posebno nuklearne elektrane, mogu također utjecati na povišenje radioaktivnosti u atmosferi u svojoj neposrednoj okolini, kao i u biološkom materijalu (biljkama) koji raste u okolini elektrana. Tako ¹⁴C može ući i u ljudski prehrambeni lanac i može pridonijeti povećanju prirodne doze lokalnog stanovništva. Zbog svega navedenog praćenje ¹⁴C aktivnosti u okolišu može dati neke odgovore na pitanja u kojoj mjeri čovjek svojim aktivnostima utječe na okoliš.

Proučavanje ciklusa ugljika u prirodi i posebno izotopa ¹⁴C u okolišu uključuje praćenje ¹⁴C aktivnosti u atmosferi (u CO₂), u biosferi (biljke) te u vodi (otopljeni ugljik), u tlu i sedimentima. U ovom radu ograničit ćemo se na ¹⁴C aktivnost u atmosferi i biosferi.

MJERENJE

U Laboratoriju za mjerenje niskih aktivnosti Instituta "Ruđer Bošković" mjeri se ¹⁴C aktivnost različitih vrsta uzoraka od 1968. godine. Do 2004. godine za mjerenje ¹⁴C aktivnosti rabio se plinski proporcionalni brojač punjen metanom (CH₄) kao brojačkim plinom, a od 2004. rabi se tekućinski scintilacijski brojač *Quantulus 1220*, u kojem se mjere uzorci pripremljeni u obliku benzena ili kao CO₂ apsorban u apsorpcijskoj smjesi (4, 5).

Uzorci atmosferskog CO₂ skupljaju se metodom kemijske apsorpcije CO₂ u zasićenoj otopini NaOH. Nastali Na₂CO₃ otapa se u laboratoriju u kiselini (HCl), a dobiveni CO₂ služi za daljnju pripremu benzena. Postupak pripreme benzena uključuje reakciju CO₂ iz uzorka s litijem na 500 °C u kojoj nastaje Li₂C₂, koji reakcijom hidrolize prelazi u acilen (C₂H₂). Polimerizacijom acetilena na vanadijevju katalizatoru dobije se benzen (4, 6).

Biološki uzorci se suše, karboniziraju pirolizom na 600 °C te oksidiraju (spaljuju) u struji kisika. Dobiveni CO₂ apsorba se u apsorpcijsko-scintilacij-

skoj smjesi sastavljenoj od 10 mL Carbosorba®E i 10 mL Permafluora®E (4, 5, 7).

Rezultati mjerenja ¹⁴C aktivnosti raznih vrsta uzoraka normaliziraju se na istu vrijednost koncentracije stabilnog izotopa ugljika ¹³C, koja prema konvenciji iznosi δ¹³C¹ = -25 ‰ (8). Mjerenjem δ¹³C u Na₂CO₃ dobivenom uzorkovanjem atmosferskog CO₂ u razdoblju 2003. – 2007. dobivene su vrijednosti između -28,1 ‰ i -20,7 ‰, sa srednjom vrijednošću (-24,0 ± 1,7) ‰ (9, 10), koja se dalje rabi za tzv. δ¹³C normalizaciju rezultata mjerenja ¹⁴C aktivnosti) u atmosferskom CO₂. Za drvo i većinu biljaka iz naših krajeva (jabuke, pšenica, kelj, trava) δ¹³C iznosi -25 ‰, a za normalizaciju ¹⁴C aktivnosti kukuruza rabi se δ¹³C = -10 ‰.

Rezultat mjerenja ¹⁴C aktivnosti može se izraziti kao specifična aktivnost A¹⁴C (Bq kg⁻¹ ugljika), ili kao relativna specifična aktivnost

$$a^{14}\text{C} = (A^{14}\text{C} / A^{14}\text{C}_0) \times 100 \quad (1)$$

gdje je A¹⁴C₀ specifična ¹⁴C aktivnost atmosfere neporemećene ljudskim utjecajem (226 Bq kg⁻¹ ugljika). Relativna specifična aktivnost izražava se kao "percent of Modern Carbon", pMC = postotak modernog ugljika, a prema definiciji (1) relativna specifična aktivnost od 100 pMC odgovara specifičnoj aktivnosti od 226 Bq kg⁻¹ ugljika (8). U ovom radu izraz "¹⁴C aktivnost" podrazumijeva relativnu specifičnu aktivnost ¹⁴C.

UZORKOVANJE

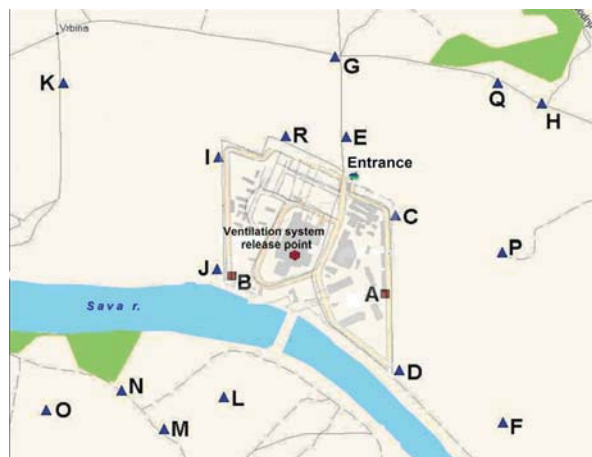
Na tablici 1 navedene su lokacije u Hrvatskoj i Sloveniji na kojima je uzorkovan atmosferski CO₂ ili biološki materijal (drvo, bilje) za mjerenje ¹⁴C aktivnosti. Praćenje ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ provodi se na mjestima različitog antropogenog utjecaja, kako bi se odredile moguće razlike između "čistog" područja (engl. *clean-air site*), urbanog središta s industrijom i okoliša nuklearne elektrane. Mjesečni podaci o ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ u Zagrebu postoje za razdoblje od 1986. godine do danas te za nešto kraća razdoblja na "čistim" područjima: Medvednica kraj Zagreba (3) i Plitvička jezera (3, 9, 11). Za širu okolicu Nuklearne elektrane Krško (NEK) postoje podaci za razdoblje 1984. – 1986. (12), a od 2006. godine prati se ¹⁴C aktivnost

¹ δ¹³C predstavlja relativno odstupanje omjera ¹³C/¹²C u uzorku od omjera u međunarodnom standardu, izaženo u promilima (‰)

Tablica 1 Lokacije na kojima se mjeri ¹⁴C aktivnost u atmosferskom CO₂, godovima drveća ili bilju

Lokacija	Koordinate	Nadmorska visina / m	Vrsta uzorka	Razdoblje uzorkovanja	Referencija
Zagreb – IRB	45 50 00 N 15 59 14 E	165	atm. CO ₂	od 1986.	3, 9, 11
Puntijarka, Medvednica	45 54 14 N 15 58 09 E	968	atm. CO ₂	1995. – 1996.	3
Plitvička jezera	44 52 54 N 15 37 09 E	536	drvo (godovi)	1950. – 1980.	3
			listinac	2005. – 2006.	15
			atm. CO ₂	2003. – 2006.	9, 11
Krško, NEK	45 56 17 N 15 30 56 E	~160	atm. CO ₂	od 2006.	5, 13, 14
			bilje	od 2006.	
Libna, 1,5 km od NEK	45 56 59 N 15 31 46 E	~180	drvo (godovi)	1979. – 1983.	12
			atm. CO ₂	1984. – 1986.	
Pesje, 3 km od NEK	45 56 26 N 15 33 11 E	~160	bilje	1984. – 1986.	12
			bilje	od 2006.	
Dobova, 10 km od NEK	45 53 37 N 15 38 42 E	~170	bilje	1984. – 1986.	12
			bilje	od 2006.	
Bistra, 34 km od NEK	45 54 16 N 15 51 05 E	~200	atm. CO ₂	1984. – 1986.	12

u atmosferskom CO₂ na dvije lokacije unutar kruga Nuklearne elektrane Krško (slika 1). Uzorci se skupljaju u dvomjesečnim intervalima, osim za vrijeme tzv. remonta elektrane, kad je razdoblje skupljanja kraće (13, 14).



Slika 1 Lokacije uzorkovanja oko Nuklearne elektrane Krško. A, B – lokacije uzorkovanja atmosferskog CO₂. Lokacije uzorkovanja bioloških uzoraka u unutrašnjem (C, D, E, I, J, L i R) i vanjskom krugu (F, G, H, K, M, N, O, P i Q).

¹⁴C aktivnost godova drveta s Plitvičkih jezera i iz okolice Nuklearne elektrane Krško prije početka rada elektrane mjerena je radi rekonstrukcije ¹⁴C aktivnosti na našem području i usporedbe s globalnim promjenama ¹⁴C u atmosferi.

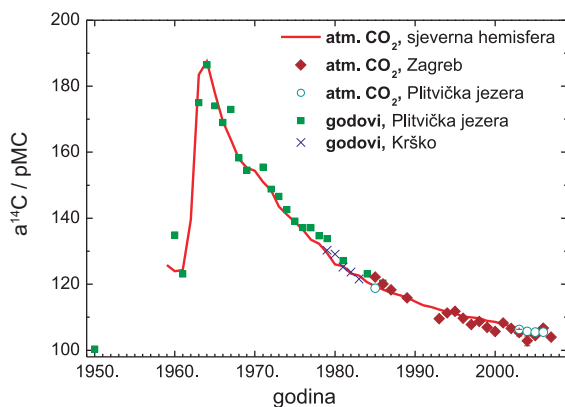
U svrhu praćenja ¹⁴C aktivnosti šumskog ekosustava Plitvičkih jezera sakupljan je listinac (jednogodišnji kompozitni uzorak lišća) na tri lokacije sa šumskim ekosustavom bukve, smreke i jele. Uzorci su skupljeni na ograđenim plohamo veličine 1 m², a uzeti su u prosincu 2005. i prosincu 2006. (15).

Biološki uzorci (jabuke, kukuruz, žito, trava) skupljeni su u neposrednoj okolici Nuklearne elektrane Krško (NEK) u Sloveniji na lokacijama udaljenima 200 m do 400 m od ispusta (unutrašnji krug), i na širem području na lokacijama udaljenima oko 1000 m (vanjski krug) (slika 1). Kao kontrolna točka na kojoj se ne očekuje utjecaj NEK-a izabrana je lokacija Dobova, udaljena 10-ak km jugoistočno od NEK-a. Dvije serije uzorkovanja na godinu provode se od 2006. godine, prvo je na početku vegetacijskog perioda, obično krajem lipnja ili početkom srpnja, a drugo uzorkovanje je pri samom kraju vegetacijskog perioda, krajem rujna ili početkom listopada.

REZULTATI

Atmosfera

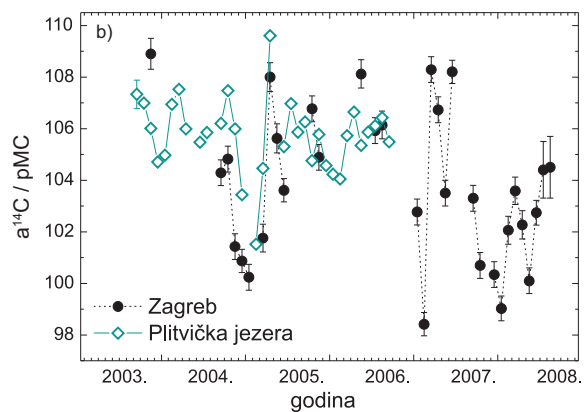
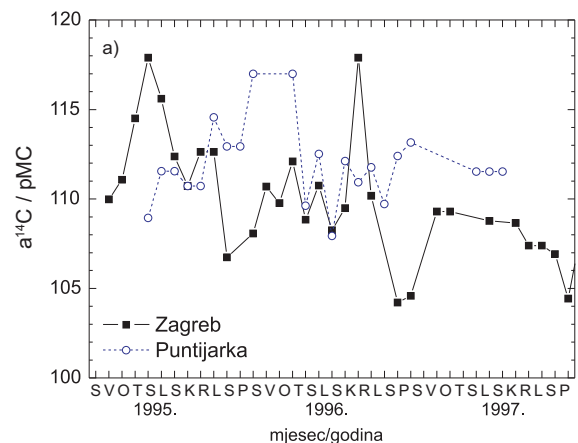
Na slici 2 uspoređene su srednje godišnje ¹⁴C aktivnosti atmosferskog CO₂ u Zagrebu i na Plitvičkim jezerima s podacima s postaje Schauinsland u Njemačkoj koja se smatra tipičnom “čistom” postajom



Slika 2 Srednje godišnje ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ na referentnoj postaji za sjevernu hemisferu (Schauinsland) te na postajama Zagreb i Plitvička jezera, kao i u godovima drveća s područja Plitvičkih jezera i iz okolice Krškoga. pMC = postotak modernog ugljika

srednje Europe i često se rabi kao referentna postaja za cijelu sjevernu hemisferu (16, 17). Nakon maksimalne ¹⁴C aktivnosti 1963. godine, opaža se stalan postupni pad srednjih godišnjih ¹⁴C aktivnosti. U razdoblju 1963. – 1976. brzina pada ¹⁴C aktivnosti u atmosferi iznosila je oko 4 pMC na godinu, od 1976. do 1982. oko 2 pMC, od 1984. do 1996. oko 1,2 pMC (3), a nakon 2000. taj je pad vrlo usporen i iznosi oko 0,4 pMC na godinu. ¹⁴C aktivnost u atmosferi danas se približila onoj neporemećene atmosfere, prije promjena uzrokovanih ljudskom djelatnošću, pogotovo atmosferskim termonuklearnim pokusima. ¹⁴C aktivnost atmosferskog CO₂ na Plitvičkim jezerima ne pokazuje odstupanja od postaje Schauinsland te je tako potvrđena pretpostavka da je to “čisto područje” glede ¹⁴C aktivnosti, tj. područje bez čimbenika koji bi lokalno utjecali na ¹⁴C aktivnost u atmosferi. Srednje godišnje ¹⁴C aktivnosti atmosferskog CO₂ u Zagrebu (u Institutu “Ruđer Bošković”) prate pad globalne aktivnosti, a pri tome je srednja vrijednost za razdoblje 1993. – 2007. [(107,3 ± 2,6) pMC] za oko 1 pMC niža od srednje vrijednosti s referentne srednjoeuropske postaje u istom razdoblju. Ta je razlika uzrokovana intenzivnim izgaranjem fosilnih goriva na gradskom području Zagreba (3, 9, 17).

Detaljnija slika mjesečnih ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ u Zagrebu (slika 3) pokazuje da je ta aktivnost u zimskim mjesecima niža nego u ljetnima, a varijacije unutar jedne godine mogu biti značajne. Tako je 1986. godine, kada smo započeli sustavna mjerenja u mjesečnim intervalima, najniža zimska ¹⁴C aktivnost iznosila 112,0 pMC, a najviša ljetna 123,2 pMC (9). U razdoblju 1995. – 1997. mjesečne su se



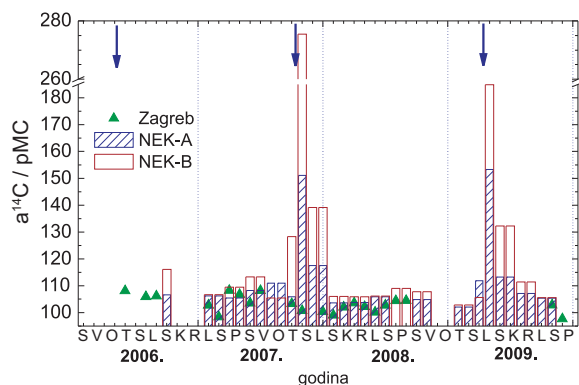
Slika 3 ¹⁴C aktivnost u mjesečnim uzorcima atmosferskog CO₂ na postajama Zagreb i Puntijarka u razdoblju 1995. – 1997. (a) te na postajama Zagreb i Plitvička jezera u razdoblju 2004. – 2008. (b). pMC = postotak modernog ugljika

¹⁴C aktivnosti u atmosferi u Zagrebu kretale od 104,2 pMC (u zimskim mjesecima) do 117,9 pMC (ljeti), sa srednjom vrijednošću (110,0 ± 3,4) pMC, dok je na postaji Puntijarka u istom razdoblju srednja vrijednost iznosila (111,9 ± 2,2) pMC (slika 3a). Najniža ¹⁴C aktivnost u zimskim mjesecima na postaji Puntijarka iznosi 107,9 pMC, što je za 3,7 pMC više nego u gradu Zagrebu, čime je dokazan značajan utjecaj izgaranja fosilnih goriva na ¹⁴C aktivnost atmosfere u urbanom središtu. U razdoblju 2005. – 2007. (10 godina nakon prethodno razmatranog razdoblja) mjesečne ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ u Zagrebu kreću se od 98,4 pMC do 108,3 pMC sa srednjom vrijednošću (104,1 ± 2,9) pMC. Na Plitvičkim jezerima se u tom razdoblju (2003. – 2006.) ¹⁴C aktivnost kretala od 101,5 pMC do 109,6 pMC, sa srednjom vrijednošću (105,7 ± 1,5) pMC (slika 3b). Niža srednja ¹⁴C aktivnost u Zagrebu od one na Plitvičkim jezerima

potvrđuje utjecaj izgaranja fosilnih goriva na ¹⁴C aktivnost u atmosferi u Zagrebu.

Praćenje ¹⁴C aktivnosti atmosfere oko Nuklearne elektrane Krško od 1984. do 1986., na početku rada elektrane, pokazalo je srednje povišenje u okolici elektrane (Libna, tablica 1) od $(2,2 \pm 0,9)$ pMC u odnosu na kontrolnu točku (Bistra), a najveći opaženi porast od 4,5 pMC opažen je u vrijeme izmjene gorivih elemenata (remont) (12). Na osnovi tog povišenja i srednjega godišnjeg faktora disperzije, procijenjen je godišnji ispuštanje ¹⁴C iz elektrane na 0,1 TBq, što je tada bio jedini podatak o ispuštanju ¹⁴C. Posljednjih nekoliko godina rutinski se mjeri ¹⁴C aktivnost ispuštena u okoliš, i u godini u kojoj se održava remont (zamjena gorivih elemenata) taj se ispuštanje kreće između 0,12 TBq i 0,14 TBq na godinu, dok je u godini bez remonta ispuštanje za red veličine manji (14).

Praćenjem ¹⁴C u atmosferi koje se redovito provodi od 2006. godine dobiveni su detaljniji podaci o vremenskoj i prostornoj raspodjeli ¹⁴C aktivnosti u neposrednoj okolici NEK-a. Za trajanja remonta opažene su nešto više ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ na lokaciji B koja leži u smjeru dominantnih vjetrova. Na toj su lokaciji najviše izmjerene ¹⁴C aktivnosti iznosile 275 pMC i 185 pMC u razdoblju remonta u listopadu 2007, odnosno travnju 2009. (slika 4), dok su na lokaciji A koja leži izvan



Slika 4 ¹⁴C aktivnost u atmosferskom CO₂ na lokacijama A i B unutar kruga Nuklearne elektrane Krško u razdoblju 2006. – 2009. Strelice označavaju vrijeme izmjene gorivih elemenata (remont elektrane). Za usporedbu je prikazana i ¹⁴C aktivnost u atmosferskom CO₂ u Zagrebu. pMC = postotak modernog ugljika

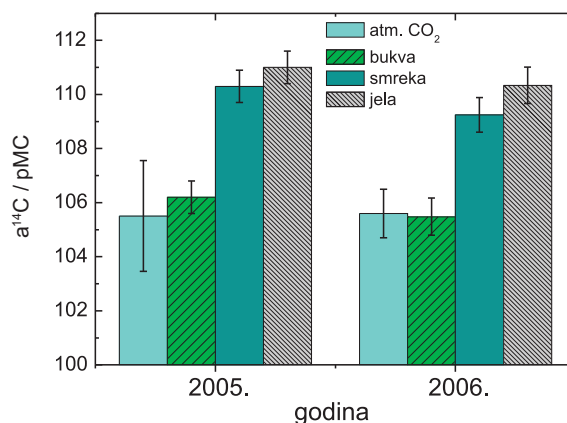
dominantnih smjerova vjetrova ¹⁴C aktivnosti u istim razdobljima niže (151 pMC i 153 pMC). Povišene ¹⁴C aktivnosti izmjerene su još tijekom nekoliko mjeseci nakon remonta te je procijenjeno vrijeme poluživota ¹⁴CO₂ u atmosferi na 1,5 mjeseci. Tijekom preostalog razdoblja na lokaciji B je ¹⁴C aktivnost atmosfere u

prosijeku nešto viša (107 pMC) od one na lokaciji A (105 pMC).

Biološki materijal

Na slici 2 prikazana je i srednja godišnja ¹⁴C aktivnost zabilježena u godovima drveća s Plitvičkih jezera i iz okolice Krškog (Libna). Vidljivo je da ¹⁴C aktivnost godova prati promjene ¹⁴C u atmosferskom CO₂ te smo tako pokazali da je globalna atmosferska kontaminacija s ¹⁴C prisutna i na inače “čistim” područjima. Ovakva rekonstrukcija lokalne ¹⁴C aktivnosti u nedavnoj prošlosti kasnije se rabi za proučavanje geokemijskog ciklusa ugljika u kršu (18). ¹⁴C aktivnost u godovima drva iz okolice Krškog također prati promjene ¹⁴C aktivnosti u atmosferi, no treba napomenuti da su ti godovi rasli u razdoblju 1979. – 1983, dakle prije početka rada NEK-a.

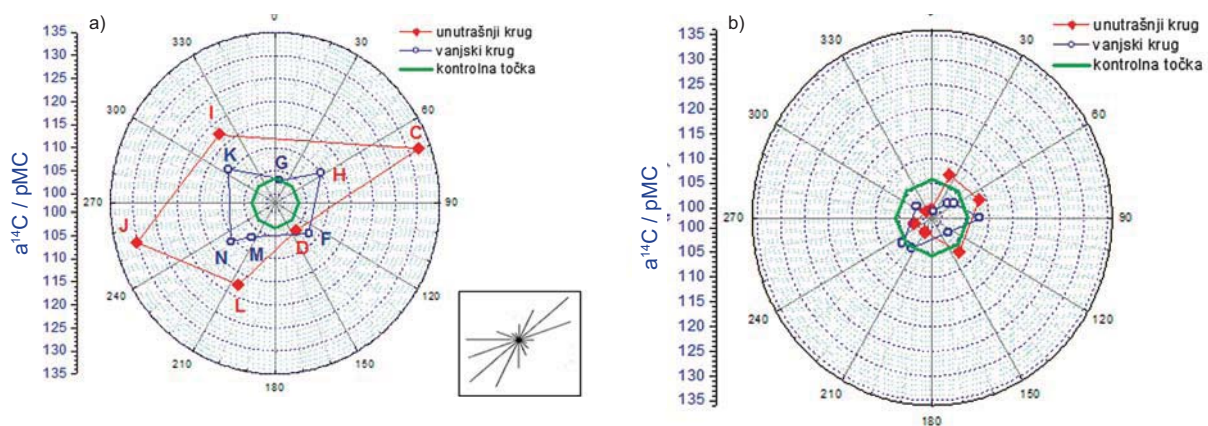
¹⁴C aktivnost u listincu skupljenom u tri različita šumska ekosustava prikazana je na slici 5. Listinac



Slika 5 ¹⁴C aktivnost kompozitnog uzorka listinca skupljenog u pretežito bukovoj, smrekovoj i jelovoj šumi 2005. i 2006. godine te usporedba sa srednjom godišnjom ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂, sve na području Plitvičkih jezera. pMC = postotak modernog ugljika

bukve pokazuje srednju ¹⁴C aktivnost $[(105,8 \pm 0,6)$ pMC] koja je bliska srednjoj vrijednosti ¹⁴C aktivnosti atmosferskog CO₂ na Plitvičkim jezerima za isto razdoblje $[(105,7 \pm 1,5)$ pMC], dok je ¹⁴C aktivnost listinca smreke $[(109,8 \pm 0,6)$ pMC] i jele $[(110,7 \pm 0,6)$ pMC] viša za 4 pMC do 5 pMC. Kako je ¹⁴C aktivnost listinca odraz ¹⁴C aktivnosti atmosferskog CO₂ u razdoblju rasta, ova se razlika može objasniti činjenicom da iglice smreke i jele potječu iz višegodišnjeg razdoblja kad je ¹⁴C aktivnost u atmosferi bila nešto viša nego danas (slika 2).

Na slici 6. prikazana je prostorna raspodjela ¹⁴C aktivnosti u bilju (većinom jabuke, kukuruz, pšenica,



Slika 6 Prostorna raspodjela ¹⁴C aktivnosti u biološkome materijalu iz unutrašnjeg i vanjskog kruga okolice NEK-a. a) Ljetno uzorkovanje u lipnju 2006. godine nakon remonta u travnju te ruža vjetrova za Krško. b) Ljetno uzorkovanje u srpnju 2007. godine. Radi usporedbe prikazana je i srednja ¹⁴C aktivnost u bilju na kontrolnoj točki u Dobovi. Slova uz simbole označavaju lokacije, (slika 1) pMC = postotak modernog ugljika

trava) iz okolice NEK-a u dva ljetna uzorkovanja, i to u lipnju 2006. godine nakon remonta provedenog u travnju iste godine te u srpnju 2007. Na oba primjera opaža se prostorna raspodjela izdužena u smjeru jugozapad-sjeveroistok koji je određen prevladavajućim smjerom vjetrova (ruža vjetrova na slici 6). Kao što je i bilo za očekivati, povišene aktivnosti ¹⁴C opažene su u biološkom materijalu koji rabi CO₂ u razdoblju za vrijeme i nakon remonta obavljenog neposredno prije vegetacijskog perioda (slika 6a). U godinama 2006. i 2009. remont elektrane obavljan je u proljeće, tako da su jabuke, čije je razdoblje vegetacije započelo neposredno nakon toga, za fotosintezu rabile nešto aktivniji CO₂ (usporedi sliku 4). S druge strane, 2007. je remont obavljan u jesen nakon razdoblja vegetacije te je izmjerena a¹⁴C u ljetnom skupljanju niža od one prethodne godine (slika 6b). Zbog povećanog ispusta ¹⁴C za vrijeme proljetnog remonta 2006. i 2009. go-

dine, na svim lokacijama je najviša ¹⁴C aktivnost u biološkome materijalu izmjerena u srpnju 2006. i lipnju 2009. (tablica 2). U oba razdoblja tijekom 2007. godine, u kojoj je remont održan tek u listopadu, ¹⁴C aktivnost bilja iz okolice NE-a slična je onoj na kontrolnoj točki kraj Dobove (tablica 2).

ZAKLJUČAK

Praćenjem ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ i u biološkome materijalu na nekoliko lokacija u Hrvatskoj i Sloveniji došli smo do sljedećih zaključaka:

- Promjene ¹⁴C aktivnosti u atmosferi uzrokovane atmosferskim termonuklearnim pokusima opažaju se na globalnoj razini, kao i na svim promatranim lokacijama, uključujući i "čista područja". Nakon najviše vrijednosti 1963.

Tablica 2 Usporedba srednjih vrijednosti ¹⁴C aktivnosti u biološkim uzorcima iz okolice NEK-a.

Datum skupljanja mjesec/godina	A ¹⁴ C / pMC		
	Unutarnji krug	Vanjski krug	Kontrolna točka
07. / 2006.	120,6 ± 11,0	108,3 ± 3,0	103,2 ± 1,5
10. / 2006.	112,3 ± 12,0	105,1 ± 2,0	104,0 ± 1,5
07. / 2007.	103,7 ± 3,9	103,7 ± 2,8	105,6 ± 1,9
09. / 2007.	106,8 ± 1,7	105,7 ± 2,6	103,8 ± 1,8
07. / 2008.	109,6 ± 3,5	107,3 ± 1,7	104,1 ± 2,3
10. / 2008.	109,1 ± 3,3	109,1 ± 3,0	104,4 ± 2,7
06. / 2009.	117,0 ± 11,2	110,5 ± 2,0	105,4 ± 1,4
09. / 2009.	112,0 ± 8,5	104,7 ± 2,5	102,0 ± 2,0

pMC = postotak modernog ugljika

godine, ¹⁴C aktivnost u atmosferi se konstantno postupno smanjuje i približava vrijednostima prije antropogenih poremećaja.

- Dodatne lokalne promjene opažaju se u urbanim središtima s razvijenom industrijom, u kojima dolazi do povećanog izgaranja fosilnih goriva, pogotovo u zimskim mjesecima, što dovodi do lokalnog relativnog smanjenja ¹⁴C aktivnosti u atmosferi, u prosjeku oko 1 pMC u usporedbi s "čistim" područjima. Te se razlike jasno uočavaju u zimskim mjesecima, kad je ¹⁴C aktivnost u atmosferskom CO₂ u gradovima i do 3 pMC niža nego na "čistom" području.
- Lokalna povišenja ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ i u biološkome materijalu opažaju se i u neposrednoj okolini nuklearnih postrojenja, kao što je pokazano na primjeru Nuklearne elektrane Krško u Sloveniji. Povišene ¹⁴C aktivnosti u atmosferskom CO₂ unutar samog kruga elektrane opažaju se samo u vrijeme izmjene gorivih elemenata (remonta) i kratko vrijeme nakon toga, dok tijekom redovitog rada elektrane ¹⁴C aktivnost u atmosferskom CO₂ nije značajno povišena u odnosu na "čista" područja. ¹⁴C aktivnost u biološkim uzorcima iz neposredne okolice NEK-a također je malo povišena ako se vegetacijsko razdoblje podudara s razdobljem remonta, a prostorna raspodjela ¹⁴C aktivnosti određena je prevladavajućim smjerom vjetrova.

Zahvala

U ovom prikazu iskorišteni su podaci dobiveni radom na projektu 098-0982709-2741 Ministarstva znanosti, obrazovanja i športa, na projektu ANTHROPOL.PROT okvirnog programa FP5 Europske komisije te na ugovoru s Nuklearnom elektranom Krško. Zahvaljujemo suradnicima NEK-a na pomoći pri uzorkovanju.

LITERATURA

1. Krajcar Bronić I. Fizikalne metode datiranja u arheologiji i umjetnosti. U: Herak M, Movre M, Obelić B, Požek M, urednici. I to je fizika... – Zbornik popularnih predavanja na Sveučilištu povodom Svjetske godine fizike. Zagreb: Hrvatsko fizikalno društvo; 2006. str. 69-77.
2. Carbon Dioxide Information Analysis Center (CDIAC). Carbon Isotopes [pristup 25. svibnja 2010.]. Dostupno na <http://cdiac.ornl.gov/carbonisotopes.html>.
3. Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Obelić B. Two decades of environmental isotope record in Croatia: reconstruction of the past and prediction of future levels. Radiocarbon 1998;40:399-416.
4. Horvatinčić N, Barešić J, Krajcar Bronić I, Obelić B. Measurements of low ¹⁴C activities in a liquid scintillation counter in the Zagreb Radiocarbon Laboratory. Radiocarbon 2004;46:105-16.
5. Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Barešić J, Obelić B. Measurement of ¹⁴C activity by liquid scintillation counting. Appl Radiat Isot 2009;67:800-4.
6. Barešić J, Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Obelić B. Mjerenje niskih ¹⁴C aktivnosti uzoraka u obliku benzena u tekućinskom scintilacijskom brojaču. U: Garaj-Vrhovac V, Kopjar N, Miljanić S, urednici. Zbornik radova Šestog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 18.-20. travnja 2005.; Stubičke Toplice, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2005. str. 158-63.
7. Barešić J, Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Obelić B. Mjerenje niskih ¹⁴C aktivnosti uzoraka pripremljenih metodom apsorpcije CO₂. U: Krajcar Bronić I, Miljanić S, Obelić B, urednici. Zbornik radova Petog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 9.-11. travnja 2003.; Stubičke Toplice, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2003. str. 267-72.
8. Mook WG, van der Plicht J. Reporting ¹⁴C activities and concentrations. Radiocarbon 1999;41:227-39.
9. Krajcar Bronić I, Vreća P, Horvatinčić N, Barešić J, Obelić B. Distribution of isotopic composition of hydrogen, oxygen and carbon in the atmosphere of Croatia and Slovenia. Arh Hig Rada Toksikol 2006;57:23-9.
10. Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Barešić J, Obelić B, Vreća P. A critical review of the atmospheric ¹⁴C activities. U: Second European IRPA Congress on Radiation Protection: from Knowledge to Action. 15.-19. svibnja 2006.; Pariz, Francuska. Book of Abstracts str. 94, Abstract P-168.
11. Krajcar Bronić I, Obelić B, Horvatinčić N, Barešić J, Sironić A, Minichreiter K. Radiocarbon application in environmental science and archaeology in Croatia. Nucl Instr Methods Phys Res A 2010;619:491-6.
12. Obelić B, Krajcar Bronić I, Srdoč D, Horvatinčić N. Environmental ¹⁴C Levels near the 632 MWe Nuclear Power Plant Krško in Yugoslavia. Radiocarbon 1986;28:644-8.
13. Obelić B, Krajcar Bronić I, Barešić J, Sironić A, Breznik B. ¹⁴C aktivnost bioloških uzoraka i atmosferskog CO₂ u neposrednoj okolini Nuklearne elektrane Krško. U: Barišić D, Grahek Ž, Krajcar Bronić I, Miljanić S, urednici. Zbornik radova Sedmog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 29.-31. svibnja 2008.; Opatija, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2008. str. 222-9.
14. Obelić B, Krajcar Bronić I, Barešić J, Horvatinčić N, Sironić A, Breznik B. ¹⁴C in biological samples from the vicinity of NPP Krško. U: The Third European IRPA Congress; 14.-18. lipnja 2010.; Helsinki, Finska. Book of abstracts.
15. Barešić J. Primjena izotopnih i geokemijskih metoda u praćenju globalnih i lokalnih promjena u ekološkom sustavu Plitvičkih jezera [disertacija]. Zagreb: Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije Sveučilišta u Zagrebu; 2009.
16. Levin I, Kromer B. The tropospheric ¹⁴CO₂ level in mid-latitudes of the Northern Hemisphere (1959–2003). Radiocarbon 2004;46:1261-72.
17. Levin I, Hammer S, Kromer B, Meinhardt F. Radiocarbon observations in atmospheric CO₂: Determining fossil fuel CO₂ over Europe using Jungfraujoch observations as background. Sci Total Environ 2008;91:211-6.
18. Horvatinčić N, Barešić J, Babinka S, Obelić B, Krajcar Bronić I, Vreća P, Suckow A. Towards a deeper understanding how carbonate isotopes (¹⁴C, ¹³C, ¹⁸O) reflect environmental changes: A study with recent ²¹⁰Pb-dated sediments of the Plitvice Lakes, Croatia. Radiocarbon 2008;50:233-53.

Summary

ENVIRONMENTAL ¹⁴C ACTIVITY: THE ATMOSPHERE AND THE BIOSPHERE

The natural equilibrium of ¹⁴C activity in atmospheric CO₂ and in the biosphere has been disturbed globally by various anthropogenic activities. Intensive atmospheric thermonuclear bomb tests in the mid 20th century doubled the natural ¹⁴C activity in the atmosphere. Since the bomb test ban, this activity has constantly been decreasing and has almost reached its natural level. This article presents the results of ¹⁴C activity monitoring in atmospheric CO₂, tree rings and biological samples at several locations in Croatia and Slovenia. Global changes in ¹⁴C activity have been observed at “clean-air” sites. In urban areas, lower atmospheric ¹⁴C activity is owed to intense fossil fuel combustion, especially in the winter. Higher ¹⁴C activity is observed in near the nuclear power plant during and immediately after refuelling outage. If refuelling is performed in the spring, when plants start to vegetate, increased ¹⁴C activity is also reflected on them.

KEY WORDS: CO₂, Croatia, nuclear power plant, plants, refuelling, Slovenia, thermonuclear bomb tests

CORRESPONDING AUTHOR:

Ines Krajcar Bronić
Institut Ruđer Bošković
Bijenička c. 54, 10000 Zagreb
E-mail: krajcar@irb.hr