

Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

Монографија
ЧЕРНОБИЉ
30 година после

Уредник
др Гордана Пантелић

Београд
2016

Монографија: **ЧЕРНОБИЉ 30 година после**

Издавач: Институт за нуклеарне науке „Винча“, Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине „Заштита“
Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

За издавача: др Борислав Грубор

Рецензенти: др Оливера Џирај Бјелац
др Иштван Бикит
др Владимир Удовичић
др Невенка Антовић
др Ивана Вуканац
др Драгослав Никезић
др Душан Mrђа
др Марија Јанковић
др Јелена Крнета Николић

Уредник: др Гордана Пантелић

Лектор/коректор: Мариола Пантелић, MSc

Објављивање монографије помогли:
Министарство просвете, науке и технолошког развоја

ISBN 978-86-7306-138-2

Штампа: Штампарија Института за нуклеарне науке „Винча“, 522,
11001 Београд, Тел. 011-8066-746
Тираж: 150 примерака

RADIOAKTIVNOST ATMOSFERE U INSTITUTU ZA NUKLEARNE NAUKE „VINČA” U PERIODU 1985-2015

Dragana J. TODOROVIĆ, Milica M. RAJAČIĆ, Marija M. JANKOVIĆ,
Jelena D. KRNETA NIKOLIĆ, Nataša B. SARAP, Gordana K. PANTELIĆ

Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za
zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, P.P.522, 11000 Beograd, Republika
Srbija

Rezime

U Institutu za nuklearne nauke "Vinča", dugi niz godina praćena je vremenska distribucija aktivnosti prirodnih i veštačkih radionuklida u prizemnom sloju atmosfere i padavinama. Aktivnosti prirodnih radionuklida ^{7}Be i ^{210}Pb , kao i veštačkog radionuklida ^{137}Cs , određene su gamaspektrometrijskom metodom, dok je aktivnost 3H (može biti i prirodogni i veštačkog porekla) određena metodom tečne scintilacione spektrometrije. Ujedno je ispitivana i ukupna beta aktivnost, koja predstavlja indikatorsko merenje nivoa kontaminacije atmosfere. U periodu ispitivanja, dogodila su se dva velika nuklearna akcidenta, 1986. u Černobilju i 2011. u Fukušimi, koja su doprinela povećanju koncentracije veštačkih radionuklida u životnoj sredini. U toku ovih događaja, praćena je dnevna promena koncentracije veštačkih radionuklida ^{137}Cs , ^{134}Cs i ^{131}I u atmosferi. Na osnovu rezultata dugogodišnjih merenja, određene su srednje mesečne koncentracije aktivnosti, pokretne sredine kao i mesečni i kvartalni indeksi za navedene radionuklide, iz kojih su uočeni sezonski efekti. Maksimalne aktivnosti ^{7}Be i 3H dostižu u letnjem, a minimalne u zimskom periodu. U slučaju ^{210}Pb , aktivnosti su bile maksimalne u jesenjim, a minimalne u prolećnim mesecima. Za radionuklid ^{137}Cs , maksimalne aktivnosti su dobijene u mesecima prelaska proleća u leto i jeseni u zimu (manje izražen maksimum).

1. UVOD

Prirodna radioaktivnost atmosfere u najvećoj meri potiče od emisije izotopa radioaktivnog gasa radona (^{222}Rn , ^{220}Rn , ^{219}Rn), koji su članovi prirodnih radioaktivnih nizova ^{238}U , ^{232}Th i ^{235}U , redom. Prirodni radioaktivni nizovi imaju nekoliko zajedničkih osobina: rodonačelnici imaju veliki period poluraspada (10^8 - 10^9 godina), poseduju izotop u gasovitom stanju (koji utiče na migraciju narednih potomaka u atmosferu) i svaki se završava stabilnim izotopom olova (^{206}Pb , ^{208}Pb , ^{207}Pb). Prvi dugoživeći potomak ^{222}Rn je ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22,3$ godine), koji se veoma brzo vezuje za neaktivne aerosole, i na taj način migrira kroz atmosferu, ili se putem padavina i taloženja prašine deponuje na površinu Zemlje [1].

Drugu komponentu prirodne radioaktivnosti atmosfere čine kosmogeni radionuklidi, koji nastaju interakcijom kosmičkog zračenja sa jezgrima

zastupljenim u atmosferi (azot, kiseonik, vodonik i drugi). Radionuklidi, nastali na ovaj način, imaju mali redni broj i vreme poluraspada od 32 minuta (^{32m}Cl) do $1,6 \times 10^6$ godina (^{10}Be). Kratkoživeći kosmogeni radionuklidi se raspadnu pre nego što stignu do Zemlje, dok se dugoživeći zadržavaju u biosferi. Be-7 ($T_{1/2} = 53$ dana) je jedan od kosmogenih radionuklida koji nastaje kao rezultat spalacije protona i neutrona visoke energije sa azotom i kiseonikom u atmosferi. Veoma brzo po nastanku, jonskom vezom formira molekule BeO i Be(OH)₂ i dalje se kreće kroz atmosferu, na isti način kao i ^{210}Pb [1].

Razvoj nuklearne tehnologije (probe sa nuklearnim oružjem, povećanje broja nuklearnih centara, razvoj postrojenja za proizvodnju i obradu nuklearnog goriva itd.) doprineo je povećanju radioaktivnosti atmosfere, radioaktivnim materijama koje nemaju prirodno poreklo, i koje definišu tzv. veštačku odnosno proizvedenu radioaktivnost atmosfere.

Transport radioaktivnih materija preko atmosfere najznačajniji je iz dva razloga - oblast zahvaćena kontaminacijom putem vazduha je velikih razmera, a uticaji kontaminacije na čoveka znatno brži (direktno zračenje, inhalacija).

Pri nuklearnim eksplozijama velika količina radioaktivnog materijala biva izbačena u atmosferu. U zavisnosti od vrste i snage eksplozije, visine na kojoj je eksplozija izvršena i meteoroloških uslova na mestu eksplozije, radioaktivni materijal može biti izbačen u troposferu ili stratosferu. Radioaktivni materijal dospeva u troposferu u slučaju prizemnih eksplozija ili eksplozija izvršenih na manjim visinama, snage ispod 100 kt. Vreme boravka u troposferi je oko trideset dana, odakle radioaktivni materijal putem suvih ili mokrih padavina dospeva do prizemnog sloja atmosfere uglavnom u onoj hemisferi u kojoj se eksplozija dogodila.

Nuklearne eksplozije srednjih i većih snaga, kontaminiraju stratosferu u kojoj se radioaktivni materijal zadržava od nekoliko meseci do godinu dana, što zavisi od dimenzija i dometa čestica. Vreme zadržavanja radioaktivnog materijala u stratosferi zavisi od visine na kojoj je materijal početno ubačen. Na visinama većim od 20 km, moguć je međuhemisferski transport, dok se na manjim visinama ovaj transport odvija veoma sporo. Radioaktivni materijal koji je ubačen u niže slojeve stratosfere u proseku se zadrži oko deset meseci pre nego se transportuje ka troposferi u kojoj se zadržava kratko, tako da se deponuje u onoj hemisferi u kojoj se eksplozija dogodila.

Širenje kontaminacije, uslovljeno je brzinom globalnog kretanja vazdušnih masa i meteorološkim prilikama u oblasti mogućeg pojavljivanja. Spuštanje radioaktivnog materijala iz viših u niže slojeve atmosfere, kao i na površinu Zemlje, može se dogoditi ne nužno pri prvom, već pri nekom od narednih prelazaka radioaktivnog oblaka.

Kao posledica nuklearnih eksplozija u atmosferu dospevaju radionuklidi različitog vremena poluraspada npr. kratkoživeći radionuklid ^{131}I , kao i dugoživeći ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{239}Pu , od kojih samo radionuklidi sa vremenom poluraspada od nekoliko dana učestvuju u procesu kruženja oko Zemlje [2].

U slučaju ispuštanja radioaktivnog materijala usled havarija na nuklearnim postrojenjima uglavnom dolazi do kontaminacije prizemnog sloja vazduha i niže troposfere. Ispušteni efluenti koji u atmosferu ulaze određenom brzinom i sa temperaturom različitom od temperature okoline, kreću se u smeru vetra, a usled

atmosferskih mešanja dolazi do njihove disperzije. Više meteoroloških modela opisuje ponašanje ispuštenih efluenata, zavisno od karakteristika lokacije i uslova emisije, a najčešće se koristi Gausov model perjanice [1].

Radioaktivni oblak se transportuje na veća ili manja rastojanja od mesta nastanka zavisno od jačine veta. Kolika je koncentracija ubačenog radioaktivnog materijala zavisi od njegovih fizičko-hemijskih osobina, kao i od dinamičkih uslova atmosfere na mestu ispuštanja, koji su određeni brzinom veta, režimom strujanja i stanjem stabilnosti atmosfere. U radioaktivnom oblaku dolazi do radioaktivnog raspada čestica, kao i do suvog i mokrog taloženja, što utiče na smanjenje količine radioaktivnih čestica u oblaku. Interakcija radioaktivnih čestica sa tlom ili vegetacijom koja ga pokriva u prizemnom sloju atmosfere, nastaje suvim kao i mokrim taloženjem (spiranje kišom).

U slučaju akcidenata na nuklearnim postrojenjima, domet kontaminacije je uglavnom lokalnog i regionalnog karaktera, dok kontaminacije uzrokovane nuklearnim probama imaju pretežno globalni karakter.

Pored ^{137}Cs , u atmosferu usled akcidenata na nuklearnim postrojenjima i nuklearnih eksplozija, dospevaju i druge radioaktivne materije, koje u većoj ili manjoj meri utiču na kontaminaciju atmosfere. Veliki biološki značaj ima ^{90}Sr koji se unosi ingestijom, naročito mleka, pa je depozicija ^{90}Sr u ljudskom organizmu najveća u kostima.

Pored fisionih produkata u slučaju akcidenata na nuklearnim postrojenjima, u atmosferu dospevaju i aktivacioni koji nastaju interakcijom neutrona sa konstrukcionim materijalima kao što su: Sr, Zr, Nb, Mo, Ru, Cs, Ba, Ce. Njihov doprinos je najveći u prvim danima posle havarije, s obzirom na to da vreme poluraspada ovih radionuklida iznosi od nekoliko sati do nekoliko dana, osim ^{60}Co čije vreme poluraspada iznosi 5,27 godine [1, 3, 4].

Pored kontaminacije prizemnog sloja atmosfere radioaktivnim aerosolima u atmosferu može da dospe i tricijum ^3H ($T_{1/2} = 12,26$ godina), jedini radioaktivni izotop vodonika. Nastaje u prirodi prevashodno interakcijom sa kosmičkim zracima, dok je veća količina tricijuma prisutna u atmosferi i u celom hidrološkom ciklusu antropogenog porekla, nastala iz nuklearnih eksplozija od 1945-1963. godine i nakon akcidenta u Černobilju. Postoje procene da je, nuklearenim probama 60-ih godina, u atmosferu dospelo oko $70,3 \times 10^{18}$ Bq aktivnosti ^3H . Ovaj radionuklid je čist beta emiter koji, emitovan u atmosferu, prelazi u tritiranu vodenu paru i postaje deo hidrološkog ciklusa, u kom se nalazi 90% njegove ukupne količine. Tricijum se iz atmosfere uklanja primarno procesima precipitacije [5].

Akcident najširih razmera dogodio se 26. aprila 1986. na četvrtom bloku nuklearne elektrane u Černobilju (bivši SSSR), pri čemu je ispušteno oko 2×10^{18} Bq radioaktivnog materijala, koji je dostigao visinu od 1500 m. Inicijalna snaga eksplozije je prouzrokovala požar, koji je zahvatilo reaktorsku zgradu, oštetivši reaktorsko jezgro i opremu. Prvih nekoliko dana trajanja akcidenta, vetar je imao smer prema severu i severozapadu, tako da je radioaktivni oblak stigao do atmosferskog sloja od 700 m na zapadu, i do 2000 m na severu. Počev od 30. aprila smer vetra se menja i omogućava da se uticaj struje radioaktivnih materija oseti i na jugu i istoku. Prvo povećanje radioaktivnosti detektovano je u Poljskoj i nekim delovima Skandinavije, u periodu od 27. do 29. aprila, zatim u Centralnoj

Evropi između 29. aprila i 2. maja, a u Zapadnoj od 3. do 5. maja. Na našim prostorima prva kontaminacija je detektovana u Sloveniji, a zatim u Hrvatskoj i Srbiji. Maksimalna radioaktivnost u Beogradu je zabeležena u periodu od 01. do 02. i od 05. do 06. maja 1986. godine [6, 7]. Sredinom maja, dolazi do povećanja radioaktivnosti na Srednjem istoku, u Kini, Japanu, Koreji, Kanadi i SAD.

Drugi po veličini posle Černobiljskog, bio je akcident na nuklearnom postrojenju u Fukušimi (Japan), koji se dogodio 11. marta 2011, usled havarije prouzrokovane zemljotresom i cunamijem. Kao posledica ovog nuklearnog akcidenta, došlo je do ispuštanja ^{131}I , ^{134}Cs i ^{137}Cs , a po nekim podacima i plutonijuma u atmosferu i okean [8, 9].

U Institutu za nuklearne nauke "Vinča", od osnivanja je organizovana Služba Zaštite od zračenja, a krajem 1958. godine, odmah nakon akcidenta na reaktoru RB, organizovana je Laboratorijska zaštita od zračenja. Redovna merenja radioaktivnosti prizemnog sloja atmosfere započeta su 1961. godine, merenjem ukupne alfa i beta aktivnosti, a 1991. uvode se gamaspektrometrijska merenja, nakon čega su retroaktivno izmereni uzorci iz prethodnih godina.

Monitoring ^3H u padavinama i površinskim vodama započet je u Laboratoriji za fiziku (danasa, Laboratorijska za nuklearnu i plazmu fiziku), a zatim od 1976. godine, uzorkovanjem i merenjem tricijuma u padavinama i površinskim vodama, nastavljen je u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine.

U ovom radu je dat prikaz dela rezultata tridesetogodišnje kontrole radioaktivnosti u aerosolima (meteorološka stanica u Institutu "Vinča") i padavinama (meteorološka stanica Zeleno Brdo), čime je obuhvaćen period pre i nakon akcidenta na nuklearnom postrojenju u Černobilju. Dugogodišnjim merenjem stvorena je baza podataka, na osnovu koje su određene srednje mesečne koncentracije, kao i mesečni i kvartalni sezonski indeksi.

2. MATERIJAL I METODE

Uzorci aerosola iz prizemnog sloja atmosfere, od početka kontrole radioaktivnosti atmosfere, sakupljaju se svakodnevno na filter papiru (Filtrak/Whatman 41, prečnika 15 cm i 80% relativne efikasnosti na slobodno nataloženu prašinu) pomoću sistema za uzorkovanje vazduha, konstantnog protoka od $25 \text{ m}^3/\text{h}$ i srednje mesečne zapremine od 15000 m^3 , u Institutu "Vinča" (N: $44^\circ 53' 33,7''$; E: $20^\circ 35' 58,4''$). Spektrometrija gama emitera rađena je u zbirnom mesečnom uzorku, koji je dobijen od svih dnevnih uzoraka, mineralizacijom na temperaturi od 370°C . Gamaspektrometrijska merenja se izvode na tri HPGe detektora relativne efikasnosti 20%, 18% i 50% (Canberra, SAD). Geometrijska efikasnost detektora određena je korišćenjem različitih referentnih radioaktivnih materijala: 1) IAEA-083, filter papir sa nakapanim ^{60}Co (2160 Bq/filteru), ^{133}Ba (846 Bq/filteru), ^{137}Cs (1182 Bq/filteru) i ^{210}Pb (151 Bq/filteru) na referentni datum 01. 01. 1986. godine; 2) referentni radioaktivni materijal matriksa aerosolne prašine nakapane ^{137}Cs aktivnosti ($207 \pm 7 \text{ Bq/kg}$) na dan 09. 03. 1988. godine, dobijen u okviru projekta SEV (SSSR); 3) sekundarni referentni radioaktivni materijal matriksa aerosolne prašine, dobijen od primarnog referentnog radioaktivnog materijala Češkog Metrološkog instituta iz Praga, ukupne aktivnosti $114,9 \text{ kBq}$ na dan 03. 03. 2008. godine i 4) sekundarni referentni radioaktivni materijal matriksa

aerosolne prašine, dobijen od primarnog referentnog radioaktivnog materijala Češkog Metrološkog instituta iz Praga, ukupne aktivnosti 72,40 kBq na 31. 08. 2012. godine.

Vreme merenja uzorka je u intervalu od 60000 do 250000 s. Specifične aktivnosti gama emitera su određene na osnovu energija: 46,5 keV za ^{210}Pb , 477 keV za ^7Be , 364 keV za ^{131}I , 605 i 795 keV za ^{134}Cs i 661,7 keV za ^{137}Cs .

Za merenje ukupne beta aktivnosti, korišćen je 2π alfa-beta proporcionalni brojač Frieske-Hoepfner FH-514. Merenje uzorka se obavlja dva puta, 5 sati nakon uzorkovanja i posle 5 dana. Nakon prvog merenja dobija se informacija o odnosu ukupne beta i alfa aktivnosti, a nakon drugog merenja dobija se vrednost ukupne beta aktivnosti dugoživećih radioaktivnih aerosola proizvedenog porekla (diskontinualna kontrola). Srednje mesečne aktivnosti dugoživećih beta emitera dobijene su usrednjavanjem dnevних vrednosti [10, 3].

Uzorci padavina u kojima se određuje ^3H , sakupljeni su na meteorološkoj stanicici Zeleno Brdo (N: 44°47'; E: 20°32'; nadmorska visina 243,2 m). Za sakupljanje uzorka koristi se kišomer površine 1 m², na 1 m od tla. Koncentracija ^3H određuje se u mesečnom kompozitnom uzorku padavina. Priprema uzorka se sastoji od preliminarne destilacije kako bi se uklonile sve nečistoće i da bi se izdvojili svi eventualno prisutni katjoni i anjoni, elektrolitičkog obogaćenja. Za elektrolizu se koristi set od 18 elektrolitičkih celija postavljenih u hladnjak, čija se temperatura održava od -4 do +4 °C. Elektrolitičko obogaćenje ^3H vrši se u serijski vezanim celijama. Radni napon za set od 18 celija je 48 V, dok je jačina struje 5 A. Elektroliza uzorka, kao i vode obeležene ^3H , vrši se 5 dana sa ukupnom strujom od 600 Ah. Za to vreme zapremina uzorka se smanji 10 puta, tj. zaostala zapremina uzorka u celijama iznosi 20 – 30 ml. Po završenoj elektrolizi, meri se zaostala zapremina uzorka u svakoj celiji, nakon čega se vrši destilacija, kako bi se uzorak odvojio od elektrolita. Priprema uzorka za merenje na tečnom scintilacionom detektoru sastoji se u odmeravanju 9 ml uzorka u polietilensku mernu bočicu zapremine 25 ml i dodavanju 12 ml scintilacionog koktela (Ultima Gold LLT, Perkin Elmer). Pored uzorka, meri se i mrtva voda koja služi za određivanje fona, i standardni rastvor ^3H u vodi (Wallac Internal Standard $^3\text{H-W}$), odmereni u istoj količini i u istom odnosu sa scintilacionim koktelom. Uzorci su mereni na niskofonskom tečnom scintilacionom detektoru LKB-Wallac 1219 RackBeta. Prozor za merenje tricijuma podešen je između 59 i 164 kanala. Vreme merenja uzorka je 1200 s. Efikasnost brojača je 15%, dok je osetljivost uređaja 39% [11].

Svi rezultati merenja dati su sa mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor k = 2 koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 95%.

3. REZULTATI I DISKUSIJA

3.1. Rezultati merenja radioaktivnosti u prizemnom sloju atmosfere

Rezultati merenja radioaktivnosti prizemnog sloja atmosfere na meteorološkoj stanici u Institutu Vinča, dati su na slikama 1 - 7. Na slici 1 su prikazane promene vrednosti koncentracije ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere u periodu intenzivnih

nuklearnih proba od 1968. do 1971. godine. Na istoj slici prikazana je i promena ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida. Promene koncentracije ^{137}Cs kao i ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida u periodu od 1985. do 1987. godine su prikazane na slici 2 (uticaj akcidenta na nuklearnom postrojenju u Černobilju). Na slici 3, prikazani su rezultati merenja koncentracije ^{137}Cs u periodu nakon akcidenta u Černobilju, od 1988. do 2015. godine.

Sa slike 1 se može videti da je vrednost koncentracije ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere reda veličine 10^{-4} Bq/m^3 . U prikazanom periodu, vrednosti koncentracije ^{137}Cs veoma dobro koreliraju sa vrednostima ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida, pri čemu linearni koeficijent korelacije iznosi 0,88 (ocena koeficijenta korelacije je u intervalu 0,79 – 0,93). Maksimalne vrednosti koncentracije ^{137}Cs u prolećnim mesecima, poklapaju se sa maksimalnim vrednostima ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida, što je i očekivano s obzirom na to da je ^{137}Cs beta emiter.

Na slici 2 vidimo da se period do 1986. godine odlikuje veoma niskim vrednostima koncentracije ^{137}Cs (reda veličine 10^{-6} - 10^{-5} Bq/m^3) kao i ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida (reda veličine 10^{-4} Bq/m^3). Detektovani ^{137}Cs predstavlja posledicu proba sa nuklearnim eksplozijama. S obzirom na to da je prošlo dosta vremena od poslednje atmosferske eksplozije koja je bila 1980. godine, niska vrednost koncentracije ^{137}Cs je očekivana.

Do naglog skoka u koncentraciji ^{137}Cs i ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida, dolazi u toku 1986. godine. U maju te godine je vrednost koncentracije ^{137}Cs bila 10^1 Bq/m^3 , što je 10^5 puta veće nego početkom 1986. godine, dok je ukupna beta aktivnost dugoživećih radionuklida u dnevним uzorcima aerosola bila veća i od 30 Bq/m^3 . Ovako povećanje je očigledna posledica akcidenta na reaktoru u Černobilju, a do opadanja koncentracije ^{137}Cs , kao i ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida, dolazi krajem iste godine. Vrednost koncentracije ^{137}Cs opada do reda veličine 10^{-5} Bq/m^3 , a ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida do 10^{-3} Bq/m^3 . Tokom 1987. godine beleži se dalje opadanje aktivnosti ^{137}Cs i ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida, uz jedan porast u januaru 1987. godine, čiji je uzrok resuspenzija radioaktivnog materijala sa tla [6]. U periodu od 1985. do 1987. godine, linearni koeficijent korelacije između ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida i aktivnosti ^{137}Cs iznosi 0,91 (ocena koeficijenta korelacije je u intervalu 0,82 – 0,95).

U narednom periodu od 1988. do 2015. godine, detektovana koncentracija opada i dalje, tako da je tokom 2015. godine koncentracija ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere ispod minimalne granice detekcije (slika 3). Takođe, sa slike 1 i slike 3 se može uočiti da se maksimalne vrednosti pojavljuju u prolećnom periodu (mart-jun). Ovo je posledica izmena vazdušnih masa u kojima dolazi do spuštanja stratosferskog materijala u troposferu, a zatim i na površinu zemlje. Međutim, pored ovih maksimuma, u vrednosti koncentracije ^{137}Cs pojavljuje se još jedan, slabije izražen, maksimum u zimskim mesecima (novembar-januar). Merna stanica na kojoj su aerosoli uzorkovani se nalazi u okolini obradivih površina koje se tokom jeseni oranjem pripremaju za prolećnu setvu, tako da dolazi do podizanja zemljišta i njegovog premeštanja. Posledica ovih jesenjih radova je resuspenzija radioaktivnog materijala sa tla, što se prilikom merenja detektuje kao

povišena vrednost koncentracije ^{137}Cs i nije povezana sa akcidentom.

Još jedan maksimum, zabeležen tokom juna 1998. godine uzrokovani je spaljivanjem radioaktivnog otpada u Španiji, što je i zvanično objavljeno od strane IAEA [12].

Za razliku od akcidenta u Černobilju, akcident na nuklearnom postrojenju u Fukušimi koji se dogodio 12. marta 2011. godine, nije značajno kontaminirao atmosferu na teritoriji Republike Srbije. Merenja su vršena svakodnevno u Institutu Vinča, na dnevnim uzorcima. U tom periodu u uzorcima su detektovani ^{134}Cs , ^{137}Cs i ^{131}I .

Na slici 4 prikazane su promene dnevnih vrednosti koncentracija ^{134}Cs i ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere tokom aprila 2011. godine, dok su na slici 5 predstavljene promene vrednosti koncentracije ^{131}I tokom marta i aprila 2011. godine. Sa prikazanih grafika, na slikama 4 i 5, može se uočiti da su vrednosti koncentracije ^{137}Cs istog reda veličine kao i ranijih godina (10^{-5} Bq/m^3), tako da jedino prisustvo ^{134}Cs i ^{131}I ukazuje na akcident. Vrednost koncentracije aerosolnog ^{131}I u ovom periodu bila je reda veličine mBq/m^3 , odnosno 10^3 puta manja nego za vreme akcidenta u Černobilju [3]. Na osnovu ranijih ispitivanja, očekivano vreme prvog pojavljivanja kontaminacije poreklom sa Azijskog kontinenta je oko 15 dana [6]. U slučaju nuklearnog akcidenta u Fukušimi, ova pretpostavka se i potvrdila, jer je maksimalna vrednost koncentracije ^{131}I izmerena 29. 03. 2011. godine (17 dana nakon akcidenta) i iznosila je $1,3 \text{ mBq/m}^3$, dok su maksimalne vrednosti koncentracije ^{134}Cs i ^{137}Cs , zabeležene 11. 04. 2011. godine, bile $6,9 \times 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$ i $9 \times 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$ respektivno.

Program kontrole radioaktivnosti atmosfere, pored proizvedenih radionuklida, obuhvata i praćenje raspodele radionuklida prirodnog porekla: ^{210}Pb od 1985. godine (slika 6) i ^7Be (kosmogenog porekla) od 1991. godine (slika 7).

Promena vrednosti koncentracije u vremenskom periodu, raspored maksimalnih i minimalnih vrednosti i linija trenda dobijenih vrednosti, može se statistički opisati i metodom pokretnih sredina tj. usrednjениh mesečnih vrednosti po periodima od 12 meseci [13]. Na slikama 6 i 7 prikazane su mesečne vrednosti koncentracije za ^{210}Pb i ^7Be , dok su punom linijom prikazane pokretne sredine.

Srednje mesečne vrednosti, koje predstavljaju odnos zbiru vrednosti koncentracije za dati mesec i ukupnog broja godina u posmatranom periodu, za ceo period ispitivanja su date na slici 8 za ^{210}Pb i slici 9 za ^7Be . Srednja vrednost koncentracije ^{210}Pb u periodu od 1985. do 2015. godine iznosi $8,91 \times 10^{-4} \text{ Bq/m}^3$, dok srednja vrednost koncentracije ^7Be u periodu od 1991. do 2015. godine (bez 1992. godine) iznosi $3,8 \text{ mBq/m}^3$.

U tabeli 1 prikazane su vrednosti mesečnih i kvartalnih indeksa [13] za ^{210}Pb i ^7Be . Iz tabele 1 kao i sa slika 8 i 9, može se uočiti da se maksimalne vrednosti koncentracije ^{210}Pb javljaju u jesenjim, a minimalne u prolećnim mesecima. U slučaju kosmogenog radionuklida ^7Be , maksimalne vrednosti koncentracije su detektovane u letnjim, a minimalne u zimskim mesecima.

Maksimum vrednosti koncentracije ^{222}Rn na mernim stanicama u Institutu, na osnovu dugogodišnjih merenja, je u jesenjem periodu [14]. S obzirom na to da je ^{210}Pb potomak ^{222}Rn , pojava maksimuma ^{210}Pb u tom periodu je očekivana. Takođe, ovaj maksimum može biti posledica jesenje obrade zemljišta, zbog koje dolazi do veće difuzije ^{222}Rn .

Sezonske promene vrednosti koncentracije ^{7}Be su posledica promena proizvodnje ovog kosmogenog radionuklida u atmosferi. Poznato je da na proces spalacije u atmosferi utiču mnogi faktori, kao što je promena kosmičkog fluksa (koja je u funkciji geografske širine i dužine), hemijski sastav atmosfere, efektivni presek interakcije i drugi. Periodičnost vrednosti koncentracije ^{7}Be je u direktnoj vezi sa periodičnošću ovih karakteristika atmosfere. Raspodela maksimalnih i minimalnih vrednosti koncentracije ^{7}Be u prizemnom sloju atmosfere se poklapa sa raspodelom u zemljama približno iste geografske širine [15, 16].

Iz svih godišnjih podataka vidi se da akcidenti 1986. i 2011. nisu uticali na vrednost koncentracije ^{210}Pb i ^{7}Be .

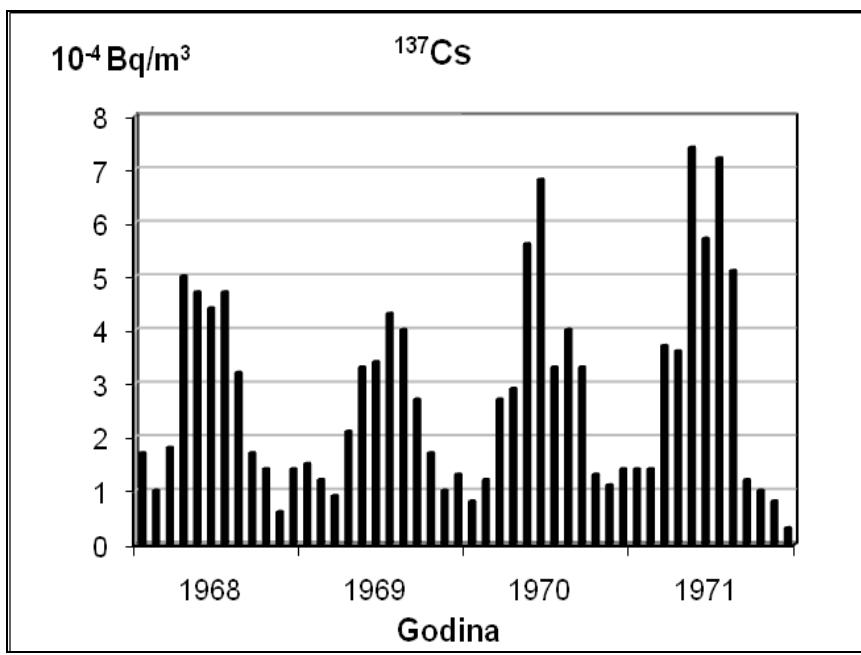
Tabela 1. Mesečni i kvartalni indeksi koncentracije ^{210}Pb (period 1985-2015. godine) i ^{7}Be (period 1991-2015. godine) u prizemnom sloju atmosfere

Mesečni	XII	I	II	III	IV	V
^{210}Pb	1,00	1,03	0,99	0,81	0,73	0,81
^{7}Be	0,49	0,51	0,68	0,86	1,08	1,43
Kvartalni	Zima			Proleće		
^{210}Pb		1,01			0,78	
^{7}Be		0,56			1,12	
Mesečni	VI	VII	VIII	IX	X	XI
^{210}Pb	0,78	0,92	1,29	1,20	1,28	1,15
^{7}Be	1,42	1,25	1,29	1,14	0,90	0,59
Kvartalni	Leto			Jesen		
^{210}Pb		0,99			1,21	
^{7}Be		1,32			0,87	

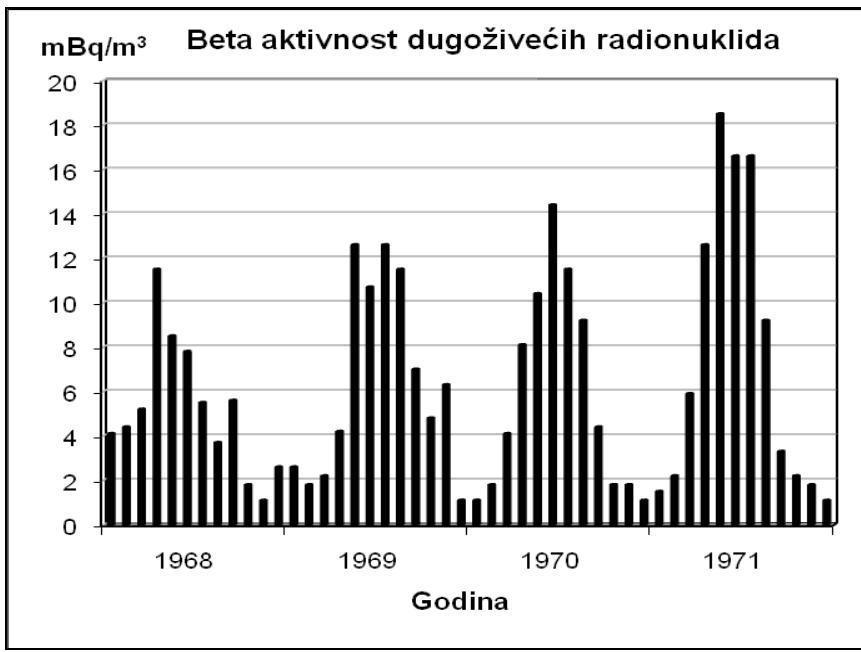
3.2. Rezultati merenja sadržaja ^{3}H u padavinama

Rezultati merenja tricijuma u padavinama na referentnoj meteorološkoj stanicici Zeleno Brdo dati su na slici 10 za period od avgusta 1985. do 2009. godine, i period januar 2013 - april 2014. godine. Program kontrole tricijuma, obuhvata i meteorološku stanicu u samom Institutu "Vinča". Dobijeni rezultati nisu prikazani zbog uticaja istraživačkog reaktora u Institutu "Vinča" koji predstavlja potencijalni emiter tricijuma usled postojanja teške vode u bazenima.

Sadržaj tricijuma kreće se od $0,40 \text{ Bql}^{-1}$ (januar 2007.) do $11,5 \text{ Bql}^{-1}$ (jul 1993.). Srednje mesečne koncentracije (slika 11) kreću se od $2,6 \text{ Bql}^{-1}$ (decembar) do $4,1 \text{ Bql}^{-1}$ (jun). Ovakve promene ukazuju na normalne sezonske varijacije sa izraženim letnjim maksimumom koji najčešće počinje od maja meseca, i sa izraženim minimumom u zimskim mesecima, što se povezuje sa efektom intenzivnog mešanja u tropopauzi za vreme proleća. Ova pojava je karakteristična za distribuciju tricijuma na Severnoj hemisferi [17]. Vrednosti mesečnih i kvartalnih indeksa za ^{3}H date su u tabeli 2 i kreću se od 0,80 za decembar do 1,27 za jun. Najveće vrednosti kvartalnih indeksa, većih od jedinice, dobijene su za period proleće (1,06) i leto (1,17), što odgovara normalnim sezonskim varijacijama [18-21].

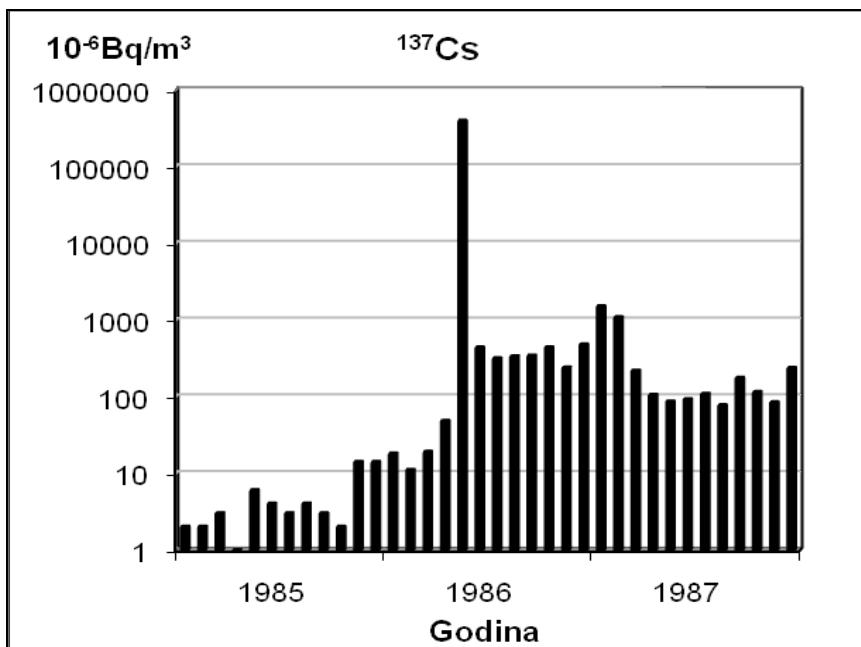


a)

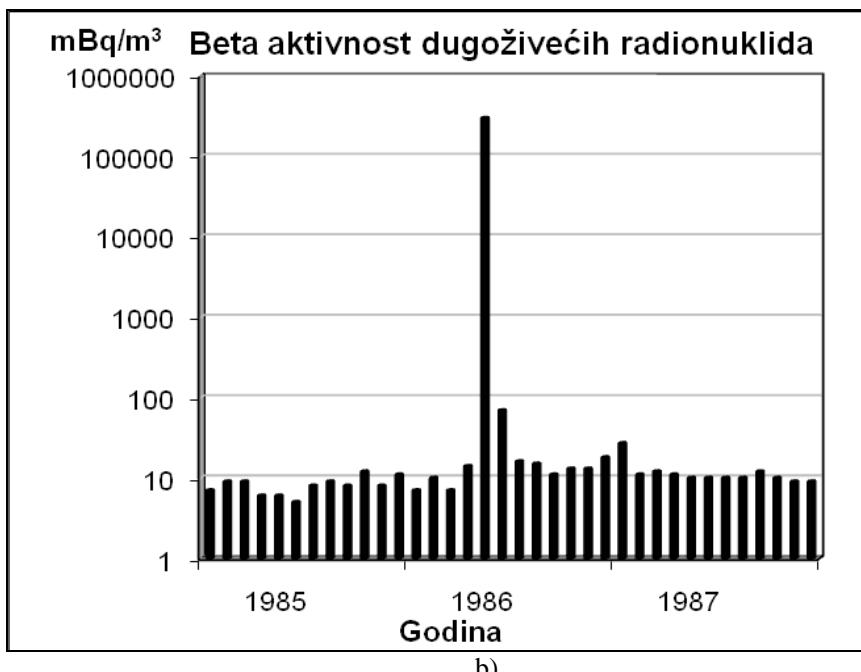


b)

Slika 1. Mesečne vrednosti u periodu od 1968. do 1971. godine: a) koncentracije ¹³⁷Cs u prizemnom sloju atmosfere, b) ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida

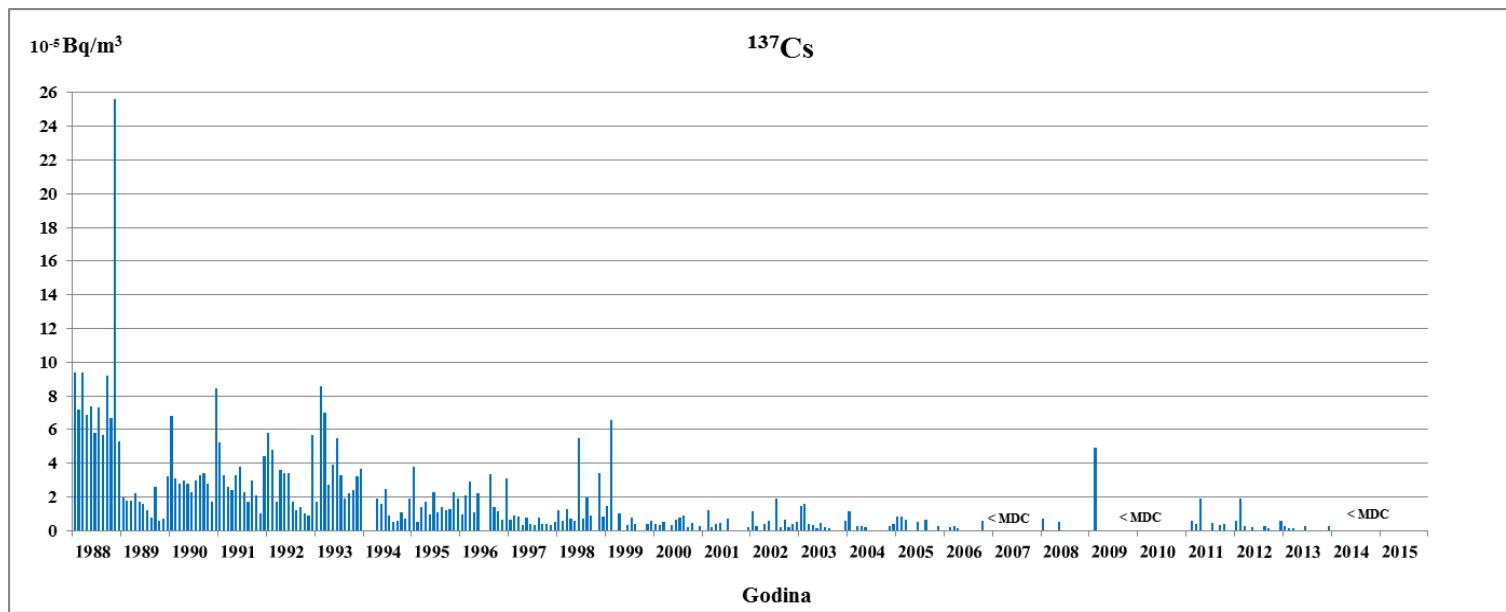


a)

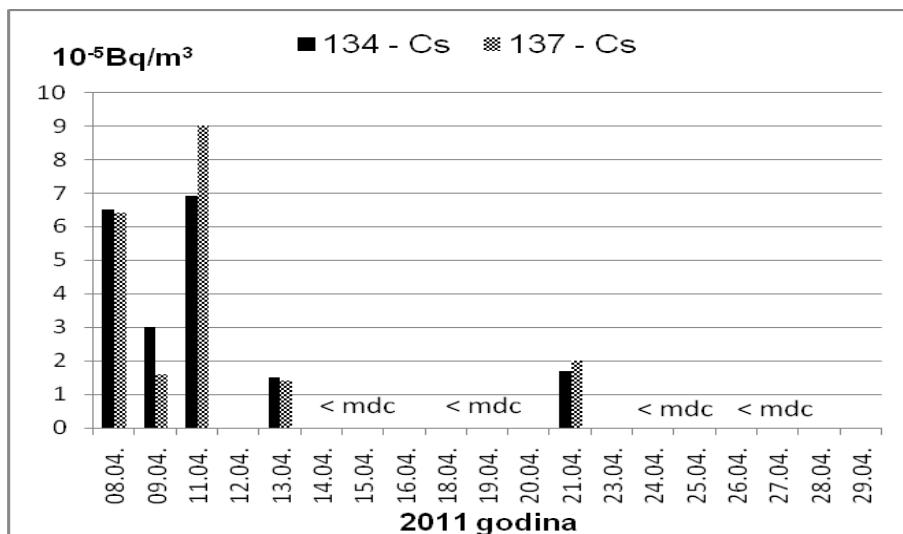


b)

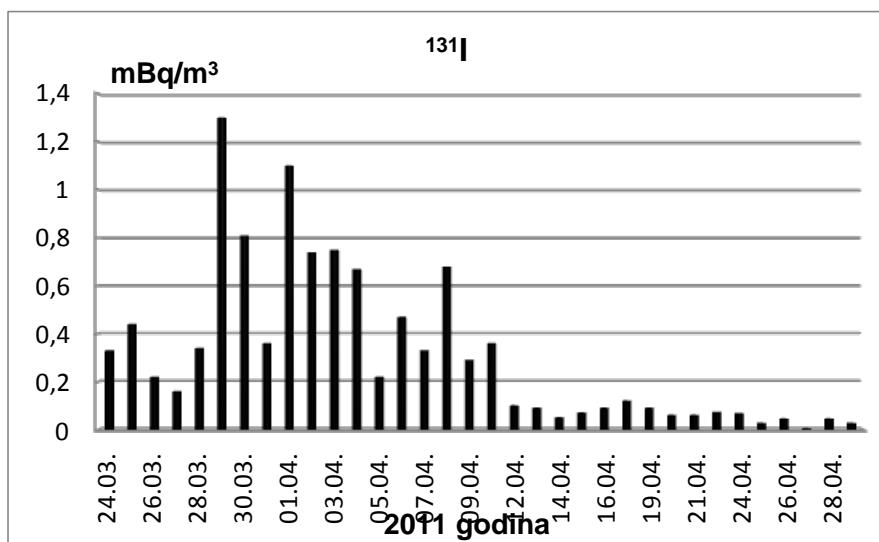
Slika 2. Mesečne vrednosti u periodu od 1985. do 1987. godine: a) koncentracije ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere, b) ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida



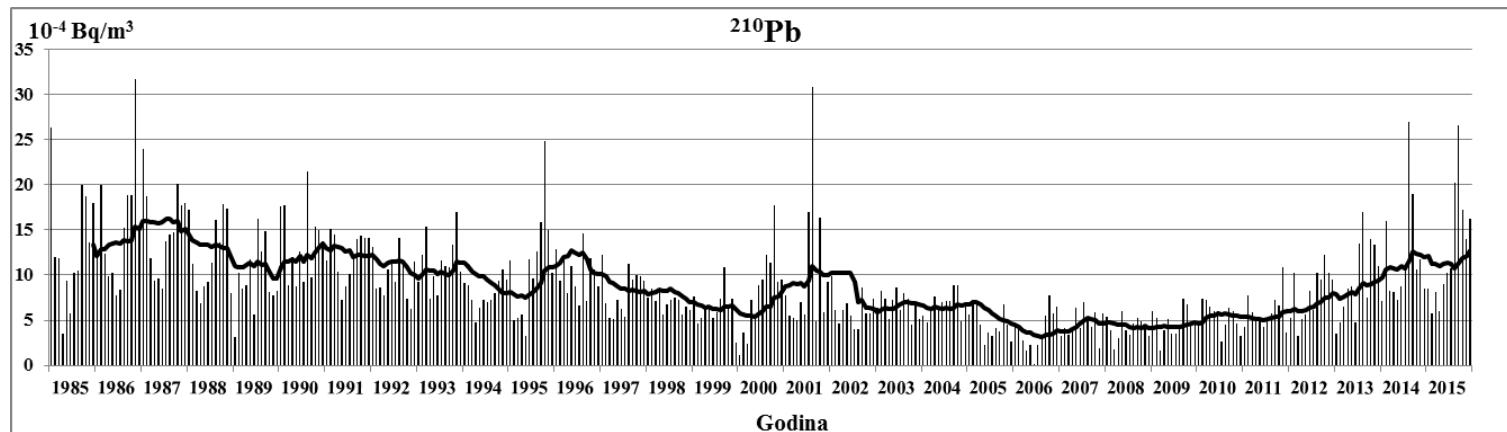
Slika 3. Mesečne vrednosti koncentracija ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere u periodu od 1988. do 2015. godine



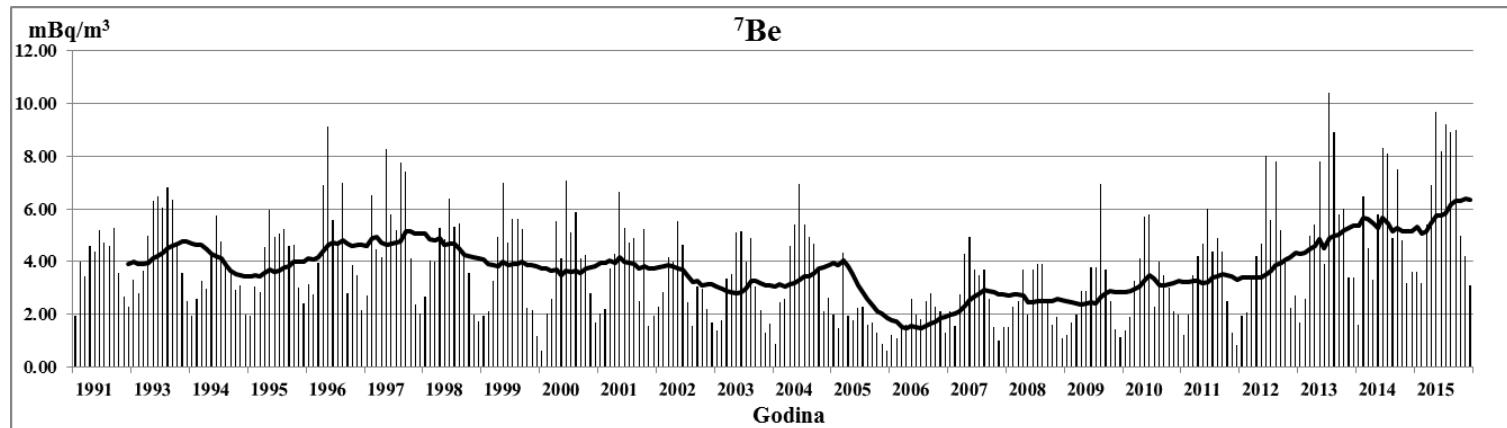
Slika 4. Dnevne vrednosti koncentracije ^{134}Cs i ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere tokom aprila 2011. godine



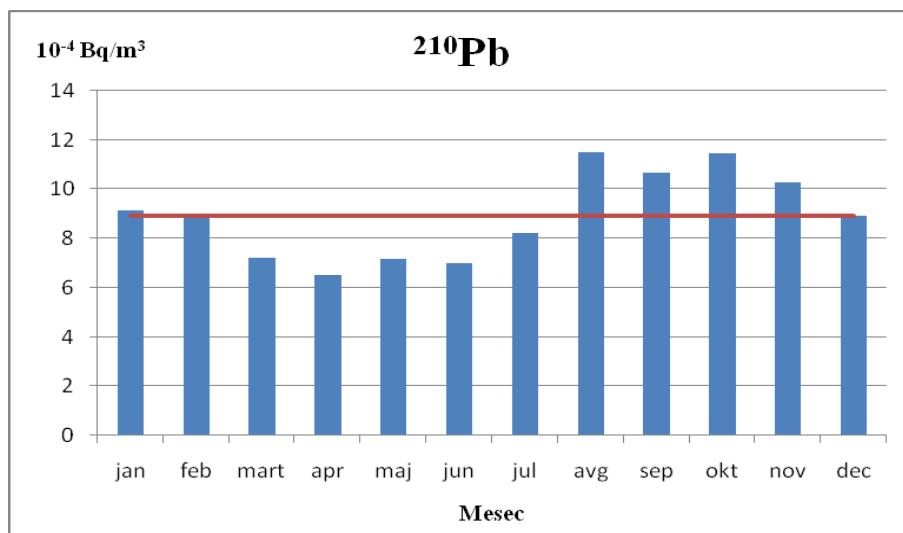
Slika 5. Dnevne vrednosti koncentracije ^{131}I u prizemnom sloju atmosfere tokom марта и априла 2011. године



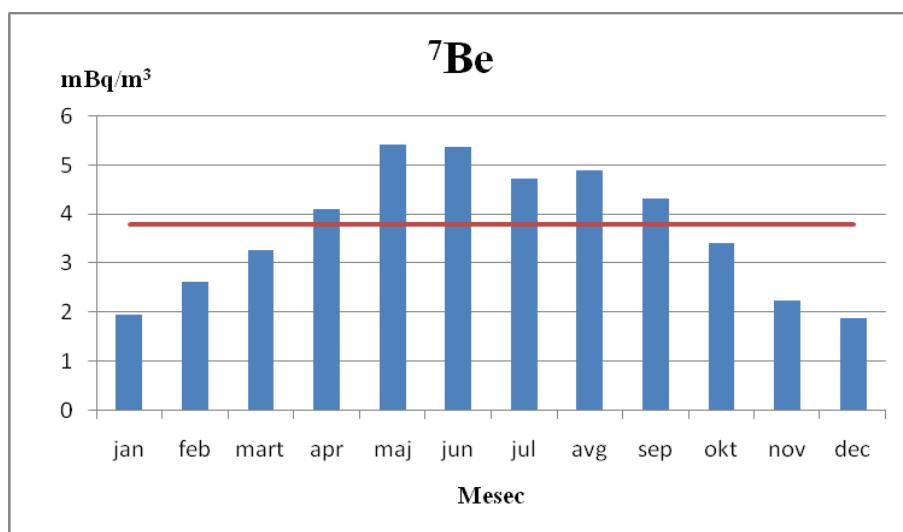
Slika 6. Mesečne vrednosti koncentracija ^{210}Pb u prizemnom sloju atmosfere u periodu od 1985. do 2015. godine. Punom linijom su prikazane pokretne sredine za period od 12 meseci



Slika 7. Mesečne vrednosti koncentracija ^7Be u prizemnom sloju atmosfere u periodu od 1991. do 2015. godine. Punom linijom su prikazane pokretne sredine za period od 12 meseci



Slika 8. Srednje mesečne vrednosti koncentracije ^{210}Pb u prizemnom sloju atmosfere u periodu od 1985. do 2015. godine. Punom linijom je predstavljena srednja vrednost za ceo period



Slika 9. Srednje mesečne vrednosti koncentracije ^7Be u prizemnom sloju atmosfere u periodu od 1991. do 2015. godine. Punom linijom je predstavljena srednja vrednost za ceo period

U godinama pre nuklearnog akcidenta u Černobilju, od 1976. do 1984. godine, vrednosti koncentracije ^{3}H u padavinama bile su u opsegu od 1,1 do 18,2 Bq l^{-1} [22] što je reda veličine rezultata dobijenih u drugim evropskim državama u okruženju (Hrvatska, Austrija, Mađarska) [23].

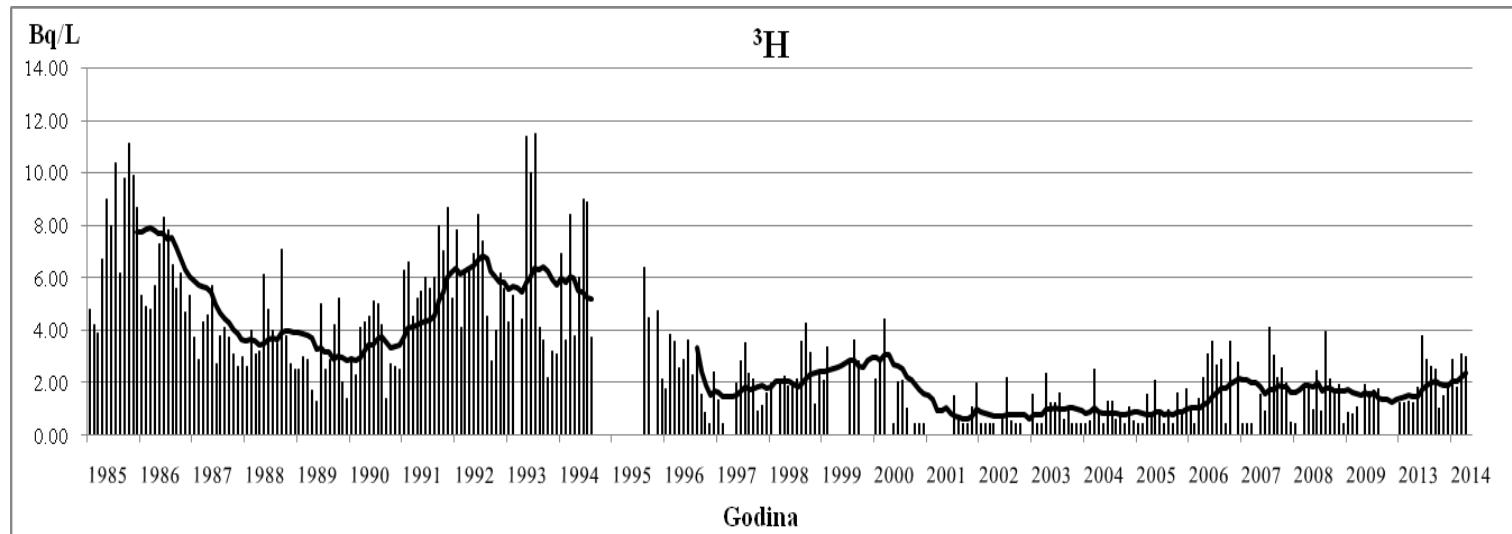
U ovom radu date su vrednosti koncentracije tricijuma u padavinama i za 1986. godinu u kojoj se dogodio nuklearni akcident u Černobilju. Sa slike 10 se može videti da ovaj događaj nije doveo do značajnog povećanja koncentracije tricijuma u padavinama na teritoriji Beograda. U prvoj dekadi maja 1986. godine u dnevним uzorcima padavina izmerene vrednosti koncentracija tricijuma su bile do 27 Bq l^{-1} [24]. Međutim, na slici 10 su prikazane vrednosti koncentracije za zbirne mesečne uzorke, tako da se ovaj porast u dnevnim uzorcima ne primećuje. Takođe, u nekim evropskim gradovima u Austriji, Nemačkoj, Poljskoj, Švajcarskoj, Irskoj, ali i u Japanu i Rusiji nije zabeležen uticaj akcidenta u Černobilju na vrednost koncentracije tricijuma u padavinama [25- 27].

4. ZAKLJUČAK

U ovom radu su prikazane promene vrednosti koncentracije proizvedenih i prirodnih radionuklida u tridesetogodišnjem periodu u aerosolima (meteorološka stanica u Institutu) i padavinama (meteorološka stanica na Zelenom brdu). Prirodni radionuklidi koji su prisutni u atmosferi, imaju izražene sezonske efekte sa maksimalnim vrednostima koncentracije ^{210}Pb u jesenjem, a ^{7}Be u letnjem periodu. Minimalne vrednosti ^{210}Pb su u prolećnom, a ^{7}Be u zimskom periodu. Od svih puteva kontaminacije, u posmatranom periodu, kontaminaciji atmosfere na našim prostorima su najviše doprinele nuklearne probe, koje su trajale više od trideset godina. Vrednosti koncentracije ^{137}Cs u ovom periodu bile su dva reda veličine veće nego današnjih dana.

Černobiljski efekat je bio dominantan samo tokom 1986. i 1987. godine. Za razliku od perioda intezivnih nuklearnih proba, trajao je kraće i nije doveo do kontaminacije viših slojeva atmosfere. Vrednosti koncentracije ^{137}Cs za vreme samog nuklearnog akcidenta u Černobilju, u maju mesecu, bile su reda veličine 10^{-1} Bq/m^3 , odnosno 10^5 puta veće nego tokom 1985. godine. Međutim, već početkom 1988. godine vrednost koncentracije ^{137}Cs opada na red veličine kao i pre akcidenta, odnosno 10^{-5} Bq/m^3 . Promena ukupne beta aktivnosti dugoživećih radionuklida istog je trenda kao i promena vrednosti koncentracije ^{137}Cs , čime se pokazuje da je ukupna beta aktivnost najvećim delom poreklom od ovog radionuklida.

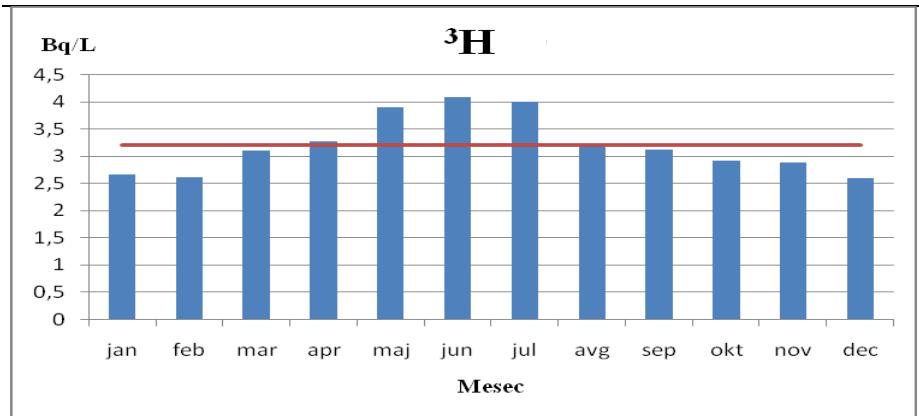
U slučaju tricijuma u padavinama, maksimalne vrednosti koncentracije dobijene su u prolećno – letnjem periodu, a minimalne vrednosti u zimskom periodu. Tokom 1986. godine, za vreme Černobiljskog efekta, nije došlo do značajnog povećanja koncentracije tricijuma u padavinama na našim prostorima. U dnevним uzorcima padavina, tokom maja meseca 1986. godine, izmerene su veće vrednosti koncentracija tricijuma i do 27 Bq l^{-1} , ali su vrednosti u zbirnom mesečnom uzorku reda veličine kao i pre Černobiljskog efekta.



Slika 10. Месечне вредности концентрација ${}^3\text{H}$ у падавинама у периоду од 1985. до 2009. године и од 2013. до 2014. године

Tabela 2. Месечни и квартални индекси концентрације ${}^3\text{H}$ у падавинама у Београду

Mesečni	XII	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	XI
ZB	0,80	0,83	0,81	0,96	1,02	1,21	1,27	1,25	1,07	0,97	0,91	0,90
Kvartalni	Zima			Proleće			Leto			Jesen		
ZB		0,81			1,06			1,17			0,93	



Slika 11. Srednje mesečne vrednosti koncentracije ^3H u padavinama na ZB za period od 1985. do 2009. godine. Punom linijom je predstavljena srednja vrednost za ceo period

Efekat nuklearnog akcidenta u Fukušimi, ukoliko posmatramo kontaminaciju atmosfere na našim prostorima, trajao je veoma kratko. Vrednost koncentracije ^{137}Cs bila je reda veličine 10^{-5}Bq/m^3 , istog reda veličine kao i pre akcidenta u Fukušimi. Jedino je prisustvo ^{134}Cs i ^{131}I ukazivalo da je došlo do havarije na nuklearnom postrojenju.

Vrednosti koncentracije ^{137}Cs u prizemnom sloju atmosfere su već godinama, počevši od 2006. godine, ispod minimalne granice detekcije koja je reda veličine 10^{-6} Bq/m^3 , tako da sa aspekta kontaminacije atmosfere ovim radionuklidom, možemo reći da je zanemarljiva.

Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva za nauku i tehnološki razvoj Srbije pod projektom: III43009.

5. LITERATURA

- [1] L. Kathren Roland. Radioactivity in the environment sources, distribution and surveillance, Harwood academic publishers, 1984.
- [2] S. Glasstone and J.P. Dolan. The efects of nuclear Weapons, United States Department of Defense and the United States Department of Energy, 1977.
- [3] D. Popovic, D. Todorovic, V. Spasic Jokić and G. Djurić. Air Radioactivity monitoring in Serbia, u Environmetal Technologies: New Developements, Ed. Burcu Ozkaraova Gungor, Publ. I-Tech Inc, Vienna, (2007) 147-166.
- [4] D. Todorović. The Effect of Tropopause Height on the Content of Radioactive Debris in Surfase Atmosphere. *Environ. Internat.* 23, No. 6 (1997)
- [5] D. G. Jacobs. Sources of tritium and its behavior upon release to the environment, U. S. Atomic Energy Commission, 1968.
- [6] D. Todorović. Distribucija prirodnih (^7Be , ^{210}Pb) i proizvedenih (^{137}Cs) radionuklida u prizemnom sloju atmosfere i slobodno nataloženoj sredini u urbanim sredina, Doktorska disertacija, Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, 2000.
- [7] D. Todorović, R. Smiljanić i S. Kudra. Radioaktivnost vazduha na području koje kontroliše Institut "Vinča", *Ecologika*, No. 10 (1996) 33-39.

- [8] O. Masson, M. Jankovic, J. Nikolic, D. Todorovic, and all. Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-Ichi Nuclear Reactors by European Networks. *Environ. Sci. & Technol.* 45 (2011) 7670-7677.
- [9] J. Nikolić, G. Pantelić, D. Todorović, M. Janković and M. Eremić-Savković. Monitoring of Aerosol and Fallout Radioactivity in Belgrade after the Fukushima Reactors Accident. *Water Air Soil Pollut.* 223 (2012) 4823-4829.
- [10] D. Todorovic, D. Popovic, G. Djuric and M. Radenkovic. ^7Be to ^{210}Pb concentration ratio in ground level air in Belgrade area. *J. Environ. Radioact.* 79 (2005) 297-307.
- [11] M. Janković. Primena indeksa simetrije za praćenje vremenske promene koncentracije tritijuma u vodama iz životne sredine. Doktorska disertacija. Fakultet za Fizičku Hemiju, Univerzitet u Beogradu, Beograd, 2013.
- [12] Daily Press Review, 15.06.1998., No.111, <http://www.iaea.or.at/worldatom/inforesource/pressreview/dpr98111.html>.
- [13] S. Prohaska i Ristić V. Hidrologija - kroz teoriju i praksu, Univerzitet u Beogradu, Rudarsko geološki fakultet, Beograd, 1996.
- [14] R. Smiljanić, D. Patić. Rezultati višegodišnjih merenja koncentracija radona u IBK, sa osvrtom na izbor metodologije merenja radona u rutinskoj kontroli životne sredine. *Čovek i životna sredina* 6 (1984) 37-39.
- [15] C. Rodenas, J. Gomez, L. S. Quindos, P. L. Fernandez, J. Soto, Be concentrations in air, rain, water and soil in Cantabria (Spain). *Appl. Radiat. Isot.* 48, No.4 (1997) 545-548.
- [16] D. Todorović, D. Popović, G. Đurić and M. Radenković. ^7Be to ^{210}Pb concentration ratio in ground level air in Belgrade area. *J. Environ. Radioact.* 79 (2005) 297-307.
- [17] Z. Jaworowski. Natural and man-made radionuclides in the global atmosphere. *IAEA Bulletin* 24 No. 2 1982) 35-39.
- [18] M. Janković and D. Todorović. Examining the Relationships Between the Activities of ^3H in Precipitation and ^{137}Cs in Ground-Level Air in Belgrade City Area. *Water Air Soil Pollut.* 223 (2012) 4471-4483.
- [19] M. Janković and D. Todorović. Determination of symmetrical index for ^3H in precipitation and ^{137}Cs in ground level air. *Water Air Soil Pollut.* 223 (2012) 979-987.
- [20] P. Vreča, I. Krajcar Bronić, N. Horvatinčić and J. Barešić. Isotopic characteristics of precipitation in Slovenia and Croatia: Comparison of continental and maritime stations. *J. Hydrol.* 330 (2006) 457– 469.
- [21] I. Radwan, Z. Pietrzak-Flis and T. Wardaszko. Tritium in surface waters, tap water and in precipitation in Poland during the 1994-1999 period. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 247 (2001) 71-77.
- [22] M. Hadžišehović, M. Župančić, R. Vukanović, Dj. BekUzarov and R. Stepić. Characteristics of environmental tritium distribution in the Belgrade region. *Journal of Radioanal. Nucl. Chem.* 98 (1986) 323-333.
- [23] Global network of isotopes in precipitation. The GNIP database, IAEA, Vienna, http://www-naweb.iaea.org/napc/ih/IHS_resources_isohis.html.
- [24] M. Hadžišehović, N. Miljević, D. Golobočanin, M. Župančić, V. Šipka and S. Kudra. Tritium abundance in Belgrade natural waters. *Isotopenpraxis* 26 (1) (1990) 5-10.
- [25] F. J. Maringer, R. Tesch, M. Hrachowitz and V. Gruber. Long-term environmental monitoring and application of low-level ^3H , ^7Be , ^{137}Cs and ^{210}Pb activity concentrations in the non-biotic compartments of the Danube in Austria. *Appl. Radiat. Isot.* 61 (2004) 313–317.
- [26] T. Koga, H. Morishima, T. Niwa and H. Kawai. Tritium precipitation in European cities and in Osaka, Japan owing to the Chernobyl nuclear accident. *J. Radiat. Res.* 32 (1991) 267–276.
- [27] K. P. Makhonko, V. M. Kim, I. Yu. Katrich and A. A. Volokitin. Comparison of the behaviour of tritium and ^{137}Cs in the atmosphere. *Atomic Energy* 85 (1998) 734-739.

RADIOACTIVITY OF THE ATMOSPHERE IN THE INSTITUTE OF NUCLEAR SCIENCES "VINČA" IN THE PERIOD 1985-2015

Dragana J. TODOROVIĆ, Milica M. RAJAČIĆ, Marija M. JANKOVIĆ,
Jelena D. KRNETA NIKOLIĆ, Nataša B. SARAP, Gordana K. PANTELIĆ

*University of Belgrade, Institute of Nuclear Sciences Vinča, Radiation and
Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia*

A long term measurements of temporal distribution of naturally occurring and artificial radionuclides in the ground level air are conducted for many years in the Institute for Nuclear Sciences "Vinča". Activity of naturally occurring radionuclides ^{7}Be i ^{210}Pb and artificial radionuclide ^{137}Cs is determined via gamma spectrometry and activity of ^{3}H in precipitation (which can be both naturally occurring and artificial) is determined using liquid scintillation spectrometry. Along these, gross alpha and beta activity measurements are also conducted. These measurements represent the indicative of atmospheric contamination. During the period of this monitoring, two major nuclear accidents have taken place – the one in Chernobyl 1986 and the accident in Fukushima 2011, that have contributed to the rise in the activity concentration of the artificial radionuclides ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{131}I and ^{3}H in the environment.

Based on the results of these long term measurements, average monthly activities, monthly and seasonal indices for the mentioned radionuclides were determined and seasonal periodical effects were noticed. Maximum values of ^{7}Be and ^{3}H were noticed in summer and minimum values were noticed in the winter. In case of ^{210}Pb , activity concentration reached its maximum in autumn and minimum in spring. For ^{137}Cs , maximal values were detected in the months between the season of spring and summer and autumn to winter (less pronounced maximum).

СИР - Каталогизација у публикацији –
Народна библиотека Србије, Београд

614.876(082)
621.311.25(477.41)(082)
504.5:539.16(497.11)(082)

ЧЕРНОБИЉ : 30 година после : монографија / уредник
Гордана Пантелић. - Београд : Институт за нуклеарне науке
"Винча", Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту
животне средине "Заштита" : Друштво за заштиту од зрачења
Србије и Црне Горе, 2016 (Београд : Институт за нуклеарне
науке "Винча"). - 286 стр. : илустр. ; 25 cm

Тираж 150. - Библиографија уз сваки рад. - Summaries.

ISBN 978-86-7306-138-2 ("Винча")

1. Пантелић, Гордана [уредник]
- a) Нуклеарна електрана "Чернобиљ" - Хаварија - Зборници
- b) Животна средина - Загађење радиоактивним материјама
- Србија - Зборници c) Несреће у нуклеарним електранама
- Последице - Зборници d) Јонизујуће зрачење - Штетно
дејство - Србија - Зборници

COBISS.SR-ID 226685452