

Vilniaus Universiteto  
Fizikos fakulteto  
Cheminės fizikos institutas

Laurynas Butkus

ANTROPOGENINIŲ VEIKSNIŲ SUKELTOS REZERVUARO AMŽIAUS  
KAITOS DRŪKŠIŲ EŽERE TYRIMAS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Aplinkos ir cheminės fizikos studijų programa

Studentas

Laurynas Butkus

Darbo vadovas

dr. Rūta Barisevičiūtė

Konsultantas

dr. Žilvinas Ežerinskis

Instituto direktorius

prof. dr. Valdas Šablinskas

Vilnius 2020

# Turinys

Įvadas.....	3
1. Literatūros apžvalga .....	5
1.1 Anglies paplitimas gamtoje .....	5
1.2 Radioanglis ( $^{14}\text{C}$ ) .....	6
1.3 Radioanglis branduoliniuose objektuose .....	9
1.4 Ignalinos atominė elektrinė.....	11
1.5 Rezervuaro efektas.....	15
1.6 Anglis ežero dugno nuosėdose .....	17
1.7 Drūkšių ežeras.....	18
2. Tyrimo metodika .....	21
2.1 Bandinių paruošimas.....	21
2.2 Grafitizavimo sistema AGE 3 ir jos veikimo principas .....	22
2.3 SSAMS – vienos pakopos greitintuvo masių spektrometras .....	25
3. Rezultatai ir jų aptarimas.....	31
3.1 Laikotarpis iki IAE veiklos pradžios ir pirmieji 15 eksploatacijos metų (1945-2000) .....	32
3.2 Laikotarpis nuo 2000 m. iki Ignalinos AE veiklos sustabdymo (2000-2009) .....	37
3.3 Laikotarpis po Ignalinos AE eksploatacijos nutraukimo (2009-2019).....	39
Pagrindiniai rezultatai ir išvados .....	41
Literatūros sąrašas .....	42
Santrauka .....	48
Summary.....	49
Padėka.....	50
Priedai.....	51
1 priedas.....	51
2 priedas.....	52

## Įvadas

Anglis yra vienas labiausiai paplitusių cheminių elementų. Gamtoje natūraliai aptinkami trys anglies izotopai. Du iš jų yra stabilūs, o trečiasis, radioanglis ( $^{14}\text{C}$ ), yra radioaktyvus, kurio pusėjimo trukmė yra  $5730 \pm 40$  metų [1]. Stabilieji anglies izotopai,  $^{12}\text{C}$  ir  $^{13}\text{C}$ , atitinkamai sudaro maždaug 98,9 % ir 1,1 %, o  $^{14}\text{C}$  – apie  $10^{-10}$  % visos aplinkoje esančios anglies. Natūraliai radioanglis susidaro Žemės atmosferoje kosminei spinduliuotei sąveikaujant su atmosfera sudarančiomis dujomis. Dideli antropogeninės radioanglies kiekiai susidarė XX a. viduryje vykusių atmosferinių branduolinių ginklų bandymų metu – radioanglies koncentracija atmosferoje padvigubėjo [2], [3]. Nuo 1963 m., pasirašius moratoriumą dėl branduolinių ginklų bandymų nutraukimo (angl. *Treaty Banning Nuclear Weapon Tests in the Atmosphere, in Outer Space and Under Water*), pagrindiniu antropogeninės radioanglies šaltiniu tapo branduolinės energetikos objektai.

Anglis yra vienas pagrindinių organinius junginius sudarančių elementų. Susidariusi radioanglis  $^{14}\text{CO}_2$  pavidalu dalyvauja globaliame anglies cikle. Fotosintezės metu  $^{14}\text{C}$ , patekusi į maisto grandinę ir pereidama visus mitybos lygmenis, kaupiasi tiek gyvuosiuose organizmuose, tiek jų irimo produktuose. Dėl šios priežasties radioanglį galima panaudoti kaip žymenį radionuklidų sklaidos, kaupimosi ir dinaminių procesų ekosistemose tyrimams.

$^{14}\text{C}$  koncentracijos skirtumai tarp vandens ekosistemos objektų bei atmosferos (atitinkančios foninę  $^{14}\text{C}$  koncentraciją) vadinami rezervuaro efektu (angl. *Reservoir Effect*, RE) [4], [5]. Rezervuaro efektas išreiškiamas rezervuaro amžiumi (angl. *Reservoir Age*, RA), kuris gali kisti laikui bėgant [6]. RA laikinės variacijos yra susijusios su anglies ciklo kaita vandens ekosistemoje (organinės bei neorganinės anglies importu/eksportu, anglies fiksacija, organinės anglies degradacija,  $\text{CO}_2$  mainais tarp atmosferos ir vandens). Tokiems laikiniams pokyčiams įtakos gali turėti klimato kaita bei įvairūs hidrologiniai pokyčiai [6]–[8], vykę tiek dėl natūralių priežasčių, tiek dėl antropogeninės veiklos poveikio. Dėl to, rezervuaro efekto tyrimai gali padėti įvertinti išorinių faktorių poveikio hidrologinei sistemai mastus.

Dažniausiai branduoliniai objektai yra statomi šalia upių ar jūrų krantų, kur sedimentacija yra sutrikdoma vandens srovių. Tai labai komplikuoja radionuklidų pasiskirstymo vandens ekosistemose tyrimus. Ignalinos atominė elektrinė (Ignalinos AE, IAE) yra retas atvejis, kai aušinimui buvo naudojamas ežero vanduo su pakankamai lėta vandens apykaita. Dėl to, Drūkšių ežeras yra ypatinga sistema radionuklidų sklaidos bei kaupimosi vandens telkiniuose analizei.

Šio darbo tikslas – eksperimentiniu tyrimu įvertinti branduolinio objekto (Ignalinos atominės elektrinės) taršą  $^{14}\text{C}$  Drūkšių ežero ekosistemoje.

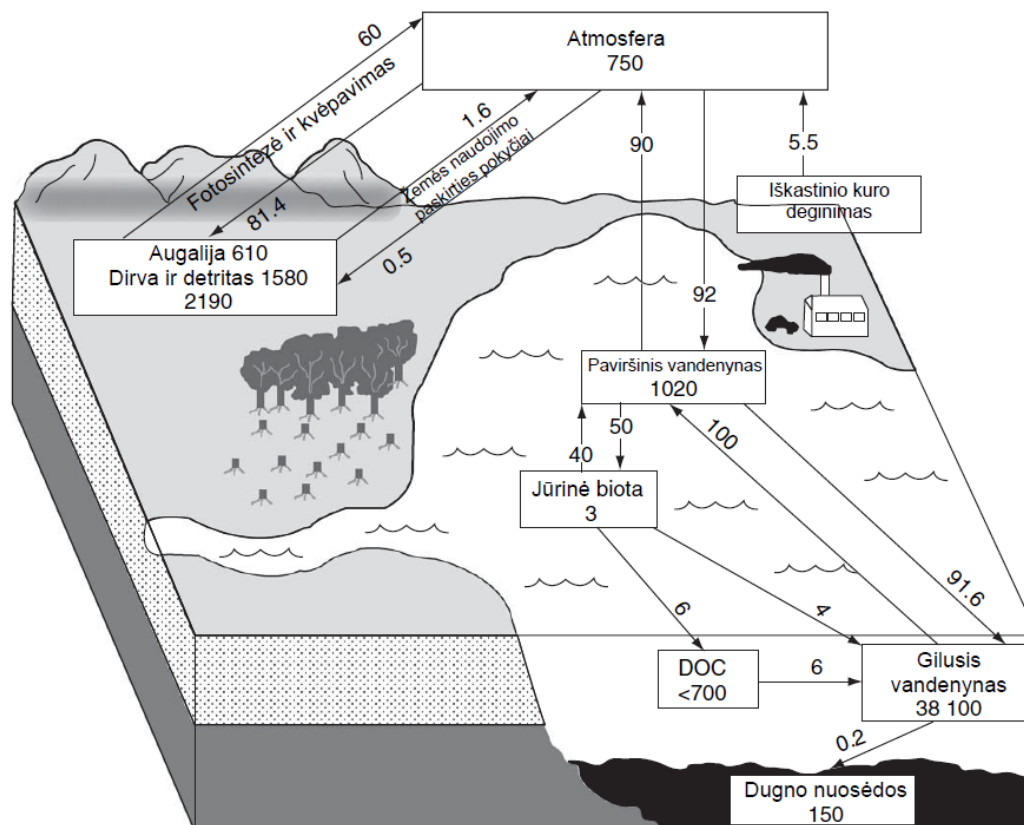
Darbo uždaviniai:

1. Atlikti  $^{14}\text{C}$  koncentracijos matavimus Drūkšių ežero dugno nuosėdų skirtingose organinėse frakcijose bei skirtingų rūšių žuvų bandiniuose.
2. Nustatyti rezervuaro amžiaus kaitą ežero ekosistemoje prieš Ignalinos AE eksploataciją, skirtingais IAE eksploatacijos etapais bei sustabdžius elektrinės veiklą.
3. Pagal radioanglies koncentracijos laikinę kaitą Drūkšių ežero ekosistemoje įvertinti taršos  $^{14}\text{C}$  mastus bei poveikį anglies ciklui.

# 1. Literatūros apžvalga

## 1.1 Anglies paplitimas gamtoje

Anglis yra vienas svarbiausių cheminių elementų, būtinų gyvybei. Žemėje anglis pasiskirsčiusi tarp trijų rezervuarų: atmosferos, sausumos biosferos bei vandenynų. Tarp jų nuolat vyksta anglies judėjimas, kuris vadinamas anglies ciklu. Rezervuarai ir anglies judėjimo schema pavaizduota 1.1 pav.



**1.1 pav.** Globalus anglies ciklas. Stačiakampiuose nurodyti anglies kiekiai atitinkamuose rezervuaruose (Gt anglies). Ant rodyklių nurodyti anglies, judančios tarp rezervuarų, srautai (Gt anglies per metus). DOC – ištirpusi organinė anglis. Adaptuota pagal [9]

Iš visų trijų rezervuarų mažiausias yra Žemės atmosfera, kurioje sukaupta apie 750 Gt anglies. Čia anglis daugiausiai aptinkama  $\text{CO}_2$  pavidalu, mažesni kiekiai – anglies monoksido (CO) ar metano ( $\text{CH}_4$ ) pavidalu. Kitas rezervuaras, kurį būtų galima išskirti, yra sausumos biosfera, kurią sudaro sausuma (dirva) ir joje gyvenantys gyvūnai bei augalija.

Didžiausias anglies rezervuaras – tai vandenynai. Juose sukaupta daugiau nei 38 Tt anglies. Hidrosferoje anglis aptinkama organinių medžiagų sudėtyje, neorganinių jonų ( $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{CO}_3^-$ ) pavidalu,  $\text{CH}_4$  bei  $\text{CO}_2$  formoje. Vandenynuose yra 60 kartų daugiau  $\text{CO}_2$  negu Žemės atmosferoje [10].

Tarp šių sausumos ir vandens sistemų nuolat vyksta anglies mainai. Anglies dioksidas iš atmosferos tirpsta vandenyje. Be to, paviršiniuose vandens sluoksniuose nuolat vyksta CO<sub>2</sub> fiksavimas (vykstant fotosintezei), taip pat ištirpusios organinės anglies (angl. *Dissolved Organic Carbon*, DOC) bei suspenduotos organinės anglies (angl. *Particulate Organic Carbon*, POC) gamyba. Jeigu vandens sistemoje dalinis CO<sub>2</sub> slėgis yra didesnis nei atmosferoje, tai tada vandenyje esantis CO<sub>2</sub> difunduoja į atmosferą. Kai vandens sistemoje dalinis CO<sub>2</sub> slėgis tampa mažesnis už atmosferinį dalinį slėgį, tuomet anglies dioksidas iš atmosferos pereina į vandenį.

Vandens augalai fiksuoja dalį šios anglies, kuri, perėjusi maisto grandinę, patenka į gyvūnus. Galiausiai, vykstant dekompozicijai, dalis jos atsiduria dugno nuosėdose. Organiniams junginiams, esantiems dugno nuosėdose ir vandens stulpelyje, yrant susidaro DIC (angl. *dissolved inorganic carbon*, ištirpusi neorganinė anglis), DOC, o esant anaerobinėmis sąlygomis – metanas.

Nuo pramonės perversmo pradžios (maždaug nuo 1800 m.) iki šių dienų dėl žmogaus vykdytos veiklos į atmosferą patenkančios anglies (CO<sub>2</sub> pavidalu) kiekis išaugo nuo 340 Gt iki 420 Gt [11]. Didžiausia dalis anglies į atmosferą pateko dėl iškastinio kuro deginimo. Apie 165 Gt šios anglies liko atmosferoje, dėl ko CO<sub>2</sub> koncentracija atmosferoje padidėjo nuo 280 ppm (prieš pramonės perversmą) iki 400 ppm [11], [12]. Likusi dalis pasiskirstė visame anglies apykaitos cikle.

## 1.2 Radioanglis (<sup>14</sup>C)

Natūraliai gamtoje aptinkami trys anglies izotopai. Du iš jų, <sup>12</sup>C bei <sup>13</sup>C, yra stabilūs, kurie atitinkamai sudaro 98,9 % ir 1,1 % visoje Žemėje esančios anglies. Trečiasis, radioanglis (<sup>14</sup>C), yra nestabilus ir sudaro maždaug apie 1,2 · 10<sup>-10</sup> % aplinkoje esančios anglies. Šio izotopo pusėjimo trukmė yra 5730 ± 40 metų [1]. Daugiausia natūralios <sup>14</sup>C susidaro kosminei spinduliuotei sąveikaujant su Žemės atmosferoje esančiais atomais vykstant reakcijai:



Taip pat radioanglis gali susidaryti 1.1 lentelėje pateiktų reakcijų metu, kurių vyksmo tikimybė yra proporcinga šiluminių neutronų sąveikos skerspjūviui ir taikinio dalelių tankiui. Susidariusi <sup>14</sup>C oksiduojama į <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> ir tokiu pavidalu dalyvauja globaliame anglies cikle.

Kadangi <sup>14</sup>C yra radioaktyvus izotopas, jo aplinkoje nuolat mažėja – beta radioaktyviojo skilimo metu (1.2.2) radioanglis (<sup>14</sup>C) virsta azotu (<sup>14</sup>N). Dėl šios priežasties radioanglies įvairiuose rezervuaruose turėtų vis mažėti, tačiau jos nuolat papildoma iš atmosferos – taip nusistovi

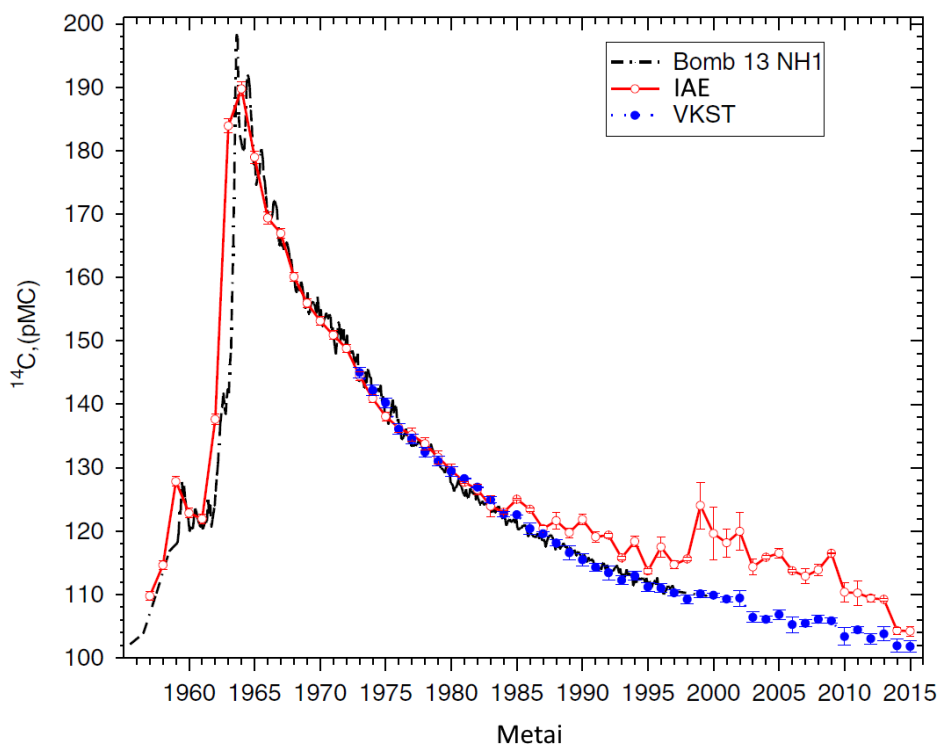
pusiausvyra. Todėl  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  santykis atmosferoje ir kituose rezervuaruose išlieka vienodas [13].  $^{14}\text{C}$  beta skilimo reakcija:



**1.1 lentelė.**  $^{14}\text{C}$  gamybos reakcijos dėl šiluminių neutronų [14], [15]

Reakcija	Natūralus taikinio elemento paplitimas, %	Šiluminių neutronų sąveikos skerspjūvis, b
$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	99,6	1,82
$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	0,038	0,24
$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$	1,1	$0,9 \cdot 10^{-3}$
$^{15}\text{N}(n, d)^{14}\text{C}$	0,366	$2,5 \cdot 10^{-7}$
$^{16}\text{O}(n, ^3\text{He})^{14}\text{C}$	99,8	$5,0 \cdot 10^{-8}$

Organizmui mirus, radioanglies apykaita tarp jo ir aplinkos sutrinka, t. y.  $^{14}\text{C}$  iš aplinkos nebeįsiskiria ir jos kiekis organizme palaipsniui mažėja. Tiriamajame bandinyje nustatius likusios  $^{14}\text{C}$  ir  $^{12}\text{C}$  izotopų santykį galima nustatyti, kada organizmas mirė.



**1.2 pav.** Radioanglies koncentracijos foninėje vietovėje Lietuvoje (Vaikšteniai, VKST), šalia Ignalinos atominės elektrinės (IAE) ir šiauriniame pusrutulyje (Bomb 13 NH1) laikinė priklausomybė. Adaptuota pagal [16]

Šiuo metu atmosferoje, taip pat ir žmoguje, esančios radioanglies savitasis aktyvumas yra apie 230 Bq/kg C. Jeigu laikysime, kad statistinį žmogų sudaro 16 kg anglies [17], tuomet  $^{14}\text{C}$  aktyvumas žmoguje būtų 4000 Bq. Radioanglis yra beta spinduliuotis, kuris spinduliuoja silpną beta spinduliuotę (maksimali energija 156 keV). Dėl to, radiologiniu požiūriu,  $^{14}\text{C}$  skleidžiama spinduliuotė didelės grėsmės žmogui nekelia – 4000 Bq atitiktų 12  $\mu\text{Sv}$  per metus efektingą dozę žmogui [15]. Palyginimui, Lietuvoje žmogus natūraliai patiria apie 3,4 mSv apšvitos dozę per metus [18]; t. y. daugiau nei dviem eilėmis didesnę dozę.

Kita vertus, galimas ir antropogeninės radioanglies susidarymas. Maždaug 220 PBq radioanglies buvo pagaminta XX a. viduryje vykusių branduolinių ginklų bandymų atmosferoje metu (1.2 pav.) [2], [14]. Beveik visi neutronai, atsiradę dėl branduolinių sprogimų, sąveikavo su  $^{14}\text{N}$  atomais ir tai nulėmė pakankamai efektyvią radioanglies gamybą [19].  $^{14}\text{C}$  savitasis aktyvumas Šiaurės pusrutulyje (kur ir vyko dauguma atominių ginklų bandymų) pasiekė apie 450 Bq/kg C ir maždaug du kartus viršijo natūralią radioanglies koncentraciją [3]. Pietiniame pusrutulyje buvo stebimas 65 proc.  $^{14}\text{C}$  koncentracijos padidėjimas lyginant su natūralia [20]. Po 1963 m. pasirašyto moratoriumo, draudžiančio branduolinių ginklų bandymus atmosferoje, kosminėje erdvėje ir po vandeni (angl. *Treaty Banning Nuclear Weapon Tests in the Atmosphere, in Outer Space and Under Water*) [21], dėl natūralaus anglies apykaitos ciklo  $^{14}\text{C}$  koncentracija atmosferoje pradėjo mažėti. 2018 metų duomenimis radioanglies aktyvumas jau yra sumažėjęs iki ~235 Bq/kg C, tačiau, lyginant su buvusiu iki 1950 m., yra maždaug 4 % didesnis [16].

Radioanglis taip pat susidaro branduoliniuose objektuose, tik jos į aplinką patenka pakankamai nedideli kiekiai, lyginant su susidariusia [15]. Plačiau apie  $^{14}\text{C}$  išleidimus iš branduolinių objektų 1.3 skyriuje.

$^{14}\text{C}$  koncentracijai aplinkoje įtakos turi ir iškastinio kuro deginimas: po pramonės perversmo į atmosferą patekęs  $^{14}\text{C}$  nuskurdintas anglies dioksidas (iškastinis kuras yra daug kartų senesnis nei  $^{14}\text{C}$  pusėjimo trukmė) praskiedė aplinkoje buvusią radioanglį. Dėl to, laikotarpiu nuo 1850 m. iki 1950 m., radioanglies koncentracija atmosferoje buvo sumažėjusi keliais procentais [22], [23]. Šis reiškinys vadinamas Suess efektu [1], kuris buvo nustelbtas branduolinių ginklų bandymų.

1946 metais Willard F. Libby pasiūlė naują organinių medžiagų datavimo metodiką pasinaudojant  $^{14}\text{C}$  izotopu [24]. Iš pradžių radioanglies kiekiai buvo nustatomi pasinaudojant scintiliatoriniais detektoriais, registruojant beta daleles. Šis metodas turi keletą trūkumų. Pakankamai tiksliam amžiaus nustatymui, bandinyje turi būti bent 1 g anglies, dėl to, kai kurie archeologiniai radiniai gali būti per maži, kad pavyktų sėkmingai išmatuoti  $^{14}\text{C}$  koncentraciją juose. Taip pat, jeigu bandinys yra labai senas (jame yra labai mažai radioanglies), matavimai gali užtrukti keletą dienų ar net iki savaitės [25].

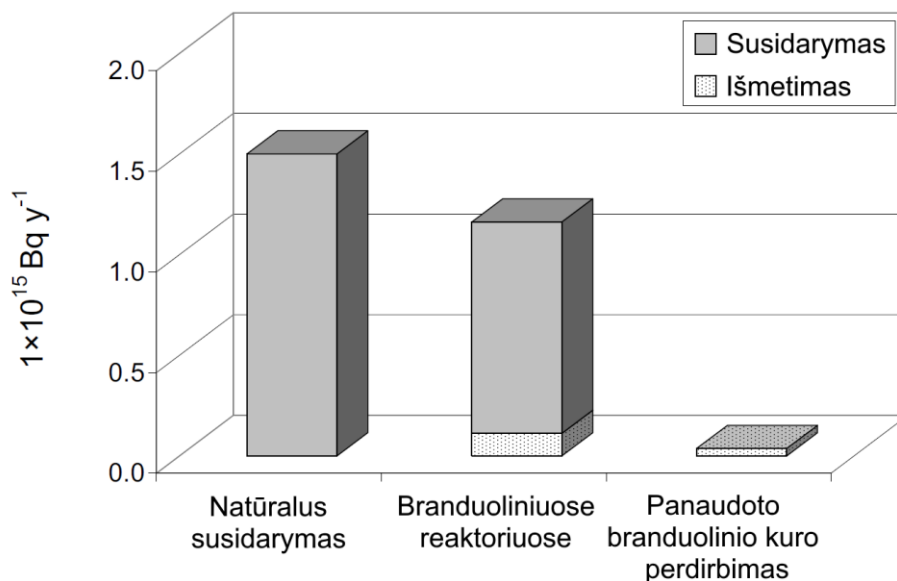


XX amžiaus antroje pusėje sukurta ir nuolat tobulinama greitintuvo masių spektrometrija (angl. *accelerator mass spectrometry*, AMS) išsprendė kelias problemas, susijusias su  $^{14}\text{C}$  nustatymu registruojant beta skilimus. Šiuo metodu  $^{14}\text{C}$  kiekio nustatymui tiriamajame bandinyje pakanka, kad jame būtų apie 1 mg anglies [26]. Sutrumpėjo ir matavimo trukmė – patikimai nustatyti radioanglies koncentraciją mėginyje galima trumpiau negu per valandą. Taip pat bandinio paruošimas AMS analizei yra paprastesnis nei matavimams beta spektrometriniu metodu [27].

Radioanglies datavimo metodas yra patikimas jei laikomasi tokių prielaidų [27]: pastovus kosminės spinduliuotės intensyvumas, radioanglies koncentracija nepriklauso nuo geografinės padėties, jos aukščio virš jūros lygio. Tačiau realybėje nėra labai tiksliai išlaikoma nei viena minėta prielaida. Pavyzdžiui,  $^{14}\text{C}$  susidarymas atmosferoje nėra pastovus, o gali kisti priklausomai nuo Saulės aktyvumo ar Žemės magnetinio dipolinio momento fluktuacijų [28]. Dėl šios priežasties, bandinio kalendorinis amžius yra nustatomas pagal kalibracines kreives (pavyzdžiui, IntCal13 ar Marine13 [29]).

### 1.3 Radioanglis branduoliniuose objektuose

Po 1963 m. pasirašyto moratoriumo, draudžiančio atmosferinius branduolinio ginklo bandymus, didžiausiu antropogeninės radioanglies šaltiniu tapo branduolinės energetikos objektai. Natūraliai ir branduoliniuose objektuose susidaranti radioanglies kiekių palyginimas pateiktas 1.3 pav.



**1.3 pav.** Natūraliai ir branduoliniuose objektuose susidariusios radioanglies kiekiai 1995-1997 metais. Adaptuota pagal [15]

Radioanglis gali susidaryti visų tipų branduoliniuose reaktoriuose bei panaudoto branduolinio kuro perdirbimo gamyklose. Daugiausia  $^{14}\text{C}$ , susidariusios branduoliniuose reaktoriuose, pasigamina, kai branduolių dalijimosi reakcijos metu atsiradę šiluminiai neutronai sąveikauja su  $^{14}\text{N}$ ,  $^{17}\text{O}$  bei  $^{13}\text{C}$  izotopais [14], [30].  $^{14}\text{N}$  yra branduoliniame kure, neutronų lėtiklyje ir šilumnešyje (kaip pagrindinės priemonės),  $^{17}\text{O}$  izotopo yra oksido kure, taip pat šilumnešyje bei neutronų lėtiklyje, o  $^{13}\text{C}$  – grafite, kuris RBMK tipo reaktoriuje atlieka neutronų lėtiklio funkciją [30].

Į aplinką išleidžiamos radioanglies kiekis ir pavidalas priklauso nuo reaktoriaus tipo. Reaktoriuje pagaminta  $^{14}\text{C}$  gali būti išleista į aplinką dujinėje formoje ar žymiai mažesniais kiekiais vandenyje ištirpusioje neorganinėje formoje. Tokios formos anglį vartoja fitoplanktonas ir moliuskai [31]. Iš branduolinių objektų į atmosferą patekusį  $^{14}\text{CO}_2$  įsisavina augalai ir, tokiu būdu,  $^{14}\text{C}$  gali patekti į maisto grandinę. Kita vertus, angliavandeniliai, pavyzdžiui, metanas, tiesiogiai negali būti suvartojami augalų. Kad galėtų patekti į mitybos grandinę,  $^{14}\text{CH}_4$  turi būti oksiduotas į  $^{14}\text{CO}_2$  [15].

Taip pat radioanglis gali pasilikti reaktoriuje ir būti išlaisvinta tik atliekant reaktoriaus išmontavimo darbus (pvz.,  $^{14}\text{C}$ , esanti RBMK reaktorių grafito klojinyje). Literatūroje pateikiami skirtingų reaktorių tipų išmetamos radioanglies kiekiai nurodyti 1.2 lentelėje.

**1.2 lentelė.** Radioanglies išmetimų į aplinką lygiai iš įvairių tipų reaktorių [32]

Reaktoriaus tipas	$^{14}\text{C}$ išleidimai į aplinką, TBq/GWa
PWR	0,24
BWR	0,51
RBMK	1,3
HWR	1,6

**Lengvojo vandens reaktoriai: verdančio vandens reaktorius** (angl. *Boiling Water Reactor*, BWR) ir **suslėgto vandens reaktorius** (angl. *Pressurized Water Reactor*, PWR). Šio tipo reaktoriuose daugiausia  $^{14}\text{C}$  pagaminama  $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$  reakcijos metu dėl šilumnešyje (vandenyje) esančio  $^{17}\text{O}$  izotopo [33]. Dėl BWR reaktorių konstrukcijos ypatumų, apie 95 proc. radioanglies iš šių reaktorių į atmosferą patenka  $^{14}\text{CO}_2$  formoje, o 5 proc. – angliavandenilių pavidalu [34]. PWR tipo reaktoriuose atvirkščiai – didžioji  $^{14}\text{C}$  dalis į atmosferą patenka  $^{14}\text{CH}_4$  ir  $^{14}\text{C}_2\text{H}_6$  pavidalu [34]. Iš lengvojo vandens tipo reaktorių mažiau nei 5 proc. radioanglies į aplinką patenka kartu su skystosiomis atliekomis ar sukaupiama jonų mainų dervose [35].

**Suslėgto sunkiojo vandens reaktorius** (angl. *pressurized heavy water reactor*, HWR), pavyzdžiui, CANDU (angl. *CANada Deuterium Uranium*). CANDU reaktoriuose  $^{14}\text{C}$  gaminasi šiluminiais neutronais sąveikaujant su  $^{14}\text{N}$  priemaišomis, esančiomis izoliacinėse dujose ir reaktoriaus konstrukcijose, bei su  $^{17}\text{O}$  izotopu, esančiu neutronų lėtiklyje – sunkiajame vandenyje.

Daugiau nei 90 procentų visos iš šių reaktorių išleidžiamos radioanglies į aplinką patenka  $^{14}\text{CO}_2$  pavidalu [36], [37].

**Verdančio vandens kanaliniai reaktoriai** (rus. *Реактор Большой Мощности Канальный*, RBMK) buvo eksploatuojami Ignalinos AE. RBMK tipo reaktoriuose maždaug 90 % radioanglies susidaro neutronų lėtiklyje – grafito klotinyje, tačiau į aplinką patenka tik labai maža dalis šios  $^{14}\text{C}$ . Daugiausiai į atmosferą radioanglies išleidžiama  $^{14}\text{CO}_2$  pavidalu [38], [39]. Taip pat nedideli radioanglies kiekiai gali būti išleidžiami į Drūkšių ežerą kartu su išleidžiamais iš IAE vandenimis. Plačiau apie IAE ir RBMK 1.4 skyriuje.

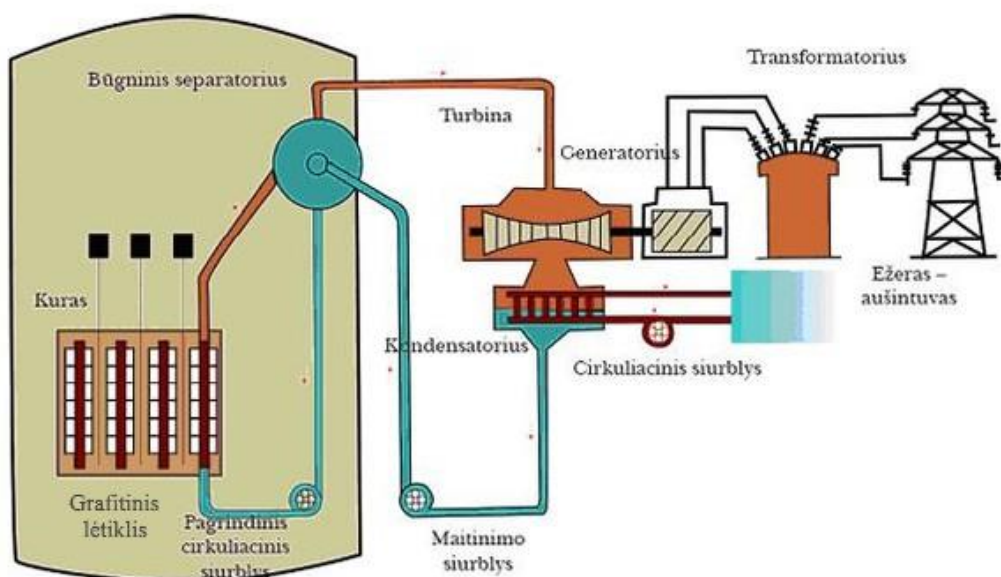
Panaudoto branduolinio kuro (PBK) perdirbimo gamyklos (pavyzdžiui, Tokai (Japonija) ar Sellafield (Didžioji Britanija) [40]–[42]) taip pat į aplinką išleidžia  $^{14}\text{C}$ . J. Koarashi ir kt. nustatė, kad Tokai branduolinio kuro perdirbimo gamyklos radioanglies išmetimai į aplinką pasiskirsto taip: ~97 procentai visos išleidžiamos radioanglies yra  $^{14}\text{CO}_2$  formoje, o likusi – angliavandenilių formos [40]. Atlikus  $^{14}\text{C}$  koncentracijos matavimus Sellafield PBK perdirbimo gamyklos apylinkėse bei Airijos jūros biotoje, nustatyta, kad iš PBK perdirbimo gamyklos išleidžiamą  $^{14}\text{C}$  (neorganinės formos) įsisavina jūrinė biota [41], [42].

Yra publikuota keletas tyrimų apie radioanglies išleidimą skystoje formoje iš atominių elektrinių su PWR tipo reaktoriais. Keturių atskirų tyrimų metu nustatyta, kad  $^{14}\text{C}$  koncentracija vandens telkiniuose aplink tirtas atomines elektrines Čekijoje, Prancūzijoje bei Kinijoje yra šiek tiek padidėjusi, tačiau vis tiek yra labai artima foninei radioanglies koncentracijai [43]–[46]. Tai reikštų, kad į vandens telkinius patenka labai maži  $^{14}\text{C}$  kiekiai, kurie iškart prasiskiedžia.

## 1.4 Ignalinos atominė elektrinė

1979 metais buvo pradėta Ignalinos atominės elektrinės (IAE, Ignalinos AE) pirmojo ir antrojo blokų statyba. 1983 m. gruodžio 31 d. buvo paleistas pirmasis energetinis blokas, o 1987 m. rugpjūčio 31 d. – antrasis. Pirmojo bloko veikla buvo sustabdyta 2004 metų pabaigoje, o antrojo – 2009 metų pabaigoje. IAE aušinimui buvo naudojamas Drūkšių ežero vanduo. Ignalinos atominės elektrinės schema pavaizduota 1.4 pav.

Ignalinos AE buvo eksploatuojami du, tuo metu galingiausi pasaulyje, RBMK-1500 (kanalinio tipo šiluminių neutronų vandens-grafito) reaktoriai, kurių vieno bloko šiluminė galia 4800 MW, o elektrinė – 1500 MW [47]. Po 1986 metais įvykusios avarijos Černobylio AE RBMK-1500 reaktorių galia buvo sumažinta ir juos eksploatuoti buvo leidžiama ne didesne kaip 4200 MW šilumine galia.



1.4 pav. Ignalinos AE schema [47]

Ignalinos AE reaktoriai buvo verdančio vandens tipo (BWR). Reaktorių aušinančiam vandeniui tekant per aktyviają zoną jis yra užvirinamas ir iš dalies paverčiamas garu. Kiekviena branduolinio kuro rinklė yra patalpinta į atskirą kuro kanalą. RBMK-1500 tipo reaktoriuose tokių kuro kanalų yra 1661 [48]. RBMK reaktoriaus neutroninėms savybėms pagerinti naudojamas greituosius neutronus lėtinantis ir mažai jų sugeriantis grafitas. Iš viso, abiejuose reaktoriuose yra apie 3400 tonų grafito [48]. Siekiant sumažinti grafito oksidaciją ir pagerinti šilumos perdavimą nuo grafito į technologinius kanalus reaktoriaus ertmė pripildyta helio ir azoto mišiniu [47].

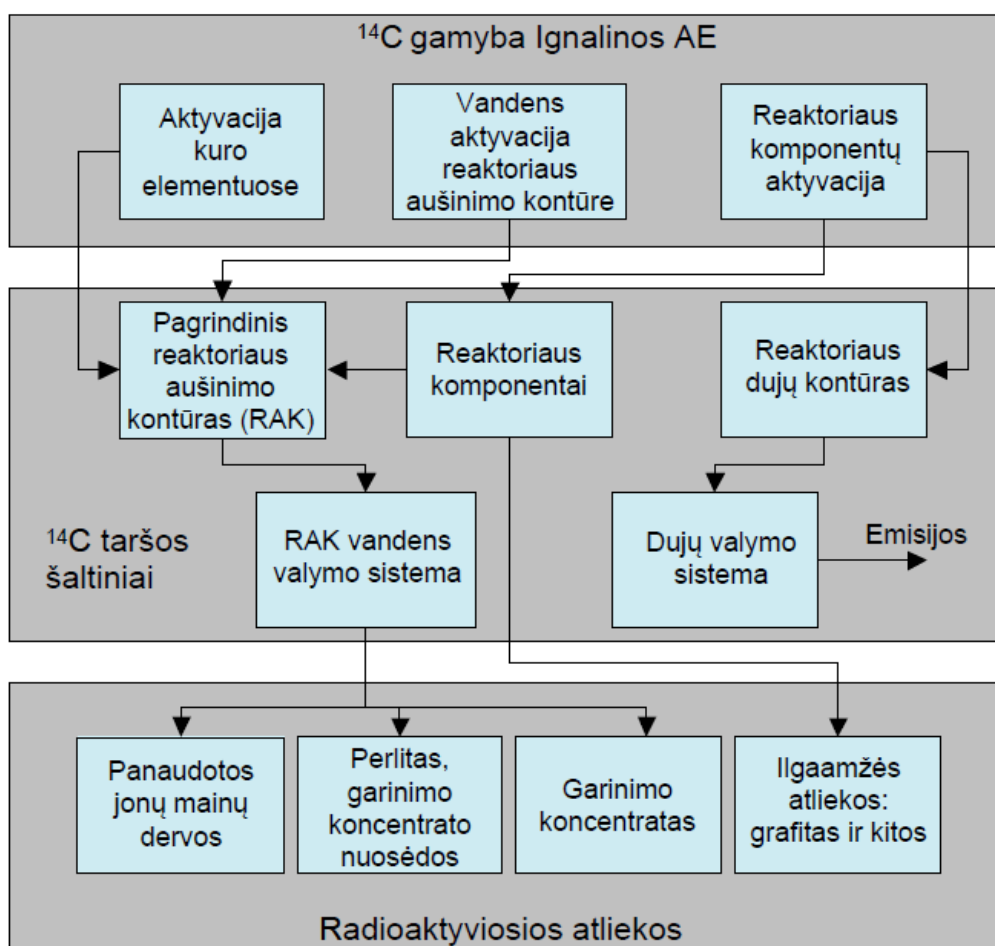
Radioanglies gamyba, migracijos keliai ir kaupimasis Ignalinos atominė elektrinėje schematiškai pavaizduoti 1.5 pav. RBMK reaktoriuose radioanglies gamyba vyksta [38]:

- šilumnešyje,
- valdymo ir apsauginių strypų kanalų aušinimo sistemoje,
- azoto-helio mišinyje, esančiame reaktoriaus ertmėje,
- kuro kanaluose,
- neutronų lėtiklyje – grafito klojinyje.

Radioanglies patekimą į pagrindinio reaktoriaus aušinimo kontūro vandenį (šilumnešį) gali nulemti [30]: šilumą išskiriančių elementų apvaskalų hermetiškumo praradimas, reaktoriaus aktyviosios zonos metalinių komponentų korozija bei tiesioginė  $^{14}\text{C}$  gamyba šilumnešyje. Radioanglis iš šilumnešio gali patekti į aplinką trimis būdais: dėl  $^{14}\text{C}$  sulaikymo struktūriniuose atominės elektrinės komponentuose; šilumnešiui nutekant į kanalizacijos sistemą, atsiradus pagrindinio aušinimo kontūro nesandarumui; šilumnešio cheminio valymo metu, pasinaudojant jonų mainų dervomis ir perlitu. Kadangi Ignalinos AE reaktorių šilumnešis yra nuolat valomas ir

gryninamas,  $H^{14}CO_3^-$  jonai yra adsorbuojami jonų mainų dervose ir ten sukonzentruojami. Panaudotos jonų mainų dervos yra cementuojamos ir saugomos trumpaamžių kietųjų radioaktyviųjų atliekų saugykloje [30].

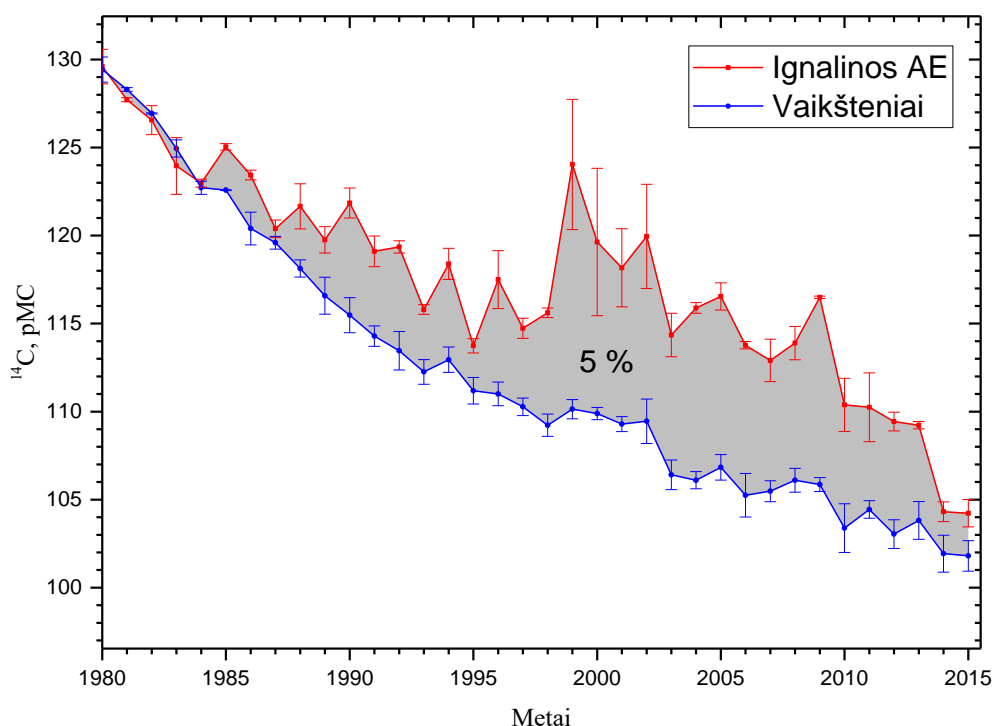
RBMK tipo reaktoriaus konstrukcija su vienu aušinimo kontūru nulemia tai, kad radioanglis per vėdinimo kaminus į aplinką yra išleidžiama visu reaktoriaus eksploatacijos metu.



**1.5 pav.** Radioanglies gamyba Ignalinos atominėje elektrinėje. Adaptuota pagal [30]

Ignalinos atominėje elektrinėje ir jos apylinkėse buvo vykdoma poveikio aplinkai kompleksinio monitoringo programa, siekiant įvertinti  $^{14}C$  ir kitų antropogeninių radionuklidų sklaidą ir akumuliaciją IAE apylinkėse bei jų lemiamas papildomas apšvitos dozes gyventojams. Prof. J. Mažeika nustatė, kad Ignalinos AE eksploatacijos metu 2002-2006 metais radioanglies koncentracija DIC (ištirpusi neorganinė anglis) formoje lyginant su fonine vietoje padidėjo apie 30 procentų [30]. Šio tyrimo metu patvirtinta, kad didžioji dalis radioanglies į aplinką pateko dujinėje būsenoje ( $^{14}CO_2$ ), o tik labai maža dalis radioanglies kartu su išleidžiamais iš IAE vandenimis pateko į Drūkšių ežerą.

Vėlesnių tyrimų, kurių metu buvo tiriama  $^{14}\text{C}$  koncentracijos aplink IAE augančių medžių rievėse, metu nustatyta ~5 proc. didesnė  $^{14}\text{C}$  koncentracija nei foninėje vietovėje (1.6 pav.) [16]. Nuo 1993 metų buvo vykdomos IAE saugos gerinimo programos, vykdomi tam tikrų reaktorių komponentų patobulinimai bei įgyvendinamos naujos saugos procedūros. Anksčiau minėto tyrimo autoriai nustatė, kad 1998-2003 keistų reaktoriaus technologinių kuro kanalų skaičius koreliuoja su padidėjusia radioanglies koncentracija medžių rievėse [16]. Dėl to galima spręsti, jog techniniai reaktorių aptarnavimo darbai bei veikla, susijusi su panaudoto branduolinio kuro tvarkymu, gali turėti įtakos  $^{14}\text{C}$  išleidimams į aplinką.



**1.6 pav.** Ignalinos AE apylinkėse ir foninėje vietovėje (Vaikšteniai) radioanglies koncentracijos medžių rievėse laikinė priklausomybė. Adaptuota pagal [16]

2019 m. publikuoto tyrimo metu buvo nustatyta, jog padidėjusi radioanglies koncentracija IAE apylinkėse augančių medžių rievėse gerai koreliuoja su vėjo kryptimi ir atstumu nuo Ignalinos AE [49]. Taip pat įvertinta, kad Ignalinos atominės elektrinės veikimo periodu (1983-2009) apylinkių gyventojai vidutiniškai galėjo gauti apie 0,6  $\mu\text{Sv}$  per metus apšvitos dozę dėl  $^{14}\text{C}$ . Tačiau tokia dozė yra nežymi palyginus su žmogaus gaunama metine doze (apie 3,4 mSv per metus [18]).

Per visą IAE eksploatacijos laikotarpį  $^{14}\text{C}$  tarša (su iš AE išleistais vandenimis) neviršijo  $3,3 \cdot 10^{10}$  Bq per metus (pagal Lietuvos aplinkos apsaugos normatyvinį dokumentą LAND 42-2007 [50]).

## 1.5 Rezervuaro efektas

Radioanglies metodu galima nustatyti įvairių medžiagų, kilusių iš žemyninių, jūrinių ar gėlavandenių anglies rezervuarų, amžių [51]. Laikoma, kad  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  santykis sausumos augaluose, kurie atlieka fotosintezę, bei sausumos žolėdžiuose (antrasis mitybos lygmuo) yra toks pat, kaip ir atmosferoje.

Kaip jau buvo minėta anksčiau,  $^{14}\text{C}$  koncentracija vandens telkinių objektuose gali skirtis nuo esančios atmosferoje ar sausumos biosferoje. Šis reiškinys yra vadinamas rezervuaro efektu (angl. *Reservoir Effect*, RE) arba radioanglies rezervuaro efektu (angl. *Radiocarbon Reservoir Effect*, RRE) [4], [5]. Dėl šios priežasties, atlikus rezervuaro efekto paveiktų bandinių radioanglies datavimą, gali būti nustatyta, kad jie yra žymiai senesni negu yra iš tikrųjų. Rezervuaro efektas gali pasendinti ir sausumos organizmus, kurie vartoja maistines medžiagas iš vandens telkinių. Dėl to, rezervuaro efektas gali sukelti problemų nustatant radinių (pavyzdžiui, kaulų, puodų nuogrūdų ir t. t.) iš senovės gyvenviečių, kurios buvo įsikūrusios šalia vandens telkinių, amžių. Rezervuaro efektas išreiškiamas rezervuaro amžiumi, kuris apibūdinamas kaip bandinio iš vandens telkinio, kurio rezervuaro amžius bus nustatomas, ir bandinio iš sausumos amžių pagal  $^{14}\text{C}$  skirtumas [52]:

$$R = {}^{14}\text{C}_V - {}^{14}\text{C}_S \quad (1.5.1)$$

$$R = 8033 \cdot \ln \frac{\text{pMC}_S}{\text{pMC}_V}, \quad (1.5.2)$$

čia  $R$  – rezervuaro amžius metais,  ${}^{14}\text{C}_V$  – bandinio iš vandens telkinio radioanglies amžius,  ${}^{14}\text{C}_S$  – bandinio iš sausumos radioanglies amžius,  $\text{pMC}_S$  ir  $\text{pMC}_V$  atitinkamai  $\text{pMC}$  vertės bandinyje iš sausumos ir iš vandens telkinio.

Skiriami du rezervuaro efektai: jūrinis (angl. *Marine Reservoir Effect*, MRE) ir gėlavandenis (angl. *Freshwater Reservoir Effect*, FRE). Laikoma, kad jūrinis RE visuose pasaulio paviršiniuose vandenynuose yra vienodas ir yra lygus maždaug 400 metų [5].

Gėlavandenis RE yra šiek tiek sudėtingesnis – kiekvienoje sistemoje gali būti skirtingas [53], o ir toje pačioje vandens ekosistemoje sistemoje gali būti užregistruotos RE laikinės variacijos, siekiančios kelis tūkstančius metų [6]. Vienas iš pagrindinių veiksnių, galinčių nulemti rezervuaro efektą gėlavandenėje sistemoje yra kietojo vandens efektas (angl. *hardwater effect*). Ištirpusi neorganinė anglis (DIC) yra vandeninės sistemos mitybos grandinės pagrindas, nes DIC įsisavina vandens augalai (fitoplanktonas, makrofitai ir kiti vandenyje gyvenantys organizmai, vykdytys fotosintezę). DIC sudaro vandenyje ištirpę karbonatai, bikarbonatai ir  $\text{CO}_2$ . Kietojo vandens efekto poveikis priklauso nuo ežero baseino paviršiaus uolienų sudėties.

Reaguojant vandeniui ir CO<sub>2</sub> susidaro anglies rūgštis, kuri tirpina „senus“ karbonatus (visai neturinčius arba turinčius labai mažai <sup>14</sup>C):



Kiekvienam „jaunam“ anglies atomui iš CO<sub>2</sub> tenka vienas „senas“ iš CaCO<sub>3</sub>, kurie abu patenka į vandens telkinį. Dėl kietojo vandens efekto didžiausias rezervuaro amžius gali būti lygus vienam radioanglies skilimo pusperiodžiui – 5730 metų. Realybėje, net ir labai kietame vandenyje, rezervuaro amžius yra mažesnis dėl CO<sub>2</sub> mainų su atmosfera [54].

Rezervuaro efektą taip pat nulemia „senos“ DIC patekimas į gėlavandenę sistemą kartu su gruntiniais vandenimis, su CO<sub>2</sub> iš tirpstančių ledynų bei ugnikalnių bei dėl senos organikos irimo [54]. Be to, vandens telkinių rezervuaro amžių gali padidinti senos DOC (ištirpusi organinė anglis) patekimas į telkinį iš durpynų ar dirvos [6]. Veikiant UV spinduliuotei DOC gali suirti į CO<sub>2</sub>, be to, nedidelės masės organiniai junginiai (iki 1000 Da) gali kauptis augaluose bei gyvuosiuose organizmuose [55], [56].

Be anglies importo ir dugno karbonatų irimo, rezervuaro amžiui įtaką daro pačiame ežere vykstančios fotosintezės intensyvumas, veikiantis CO<sub>2</sub> mainus tarp vandens sistemos ir atmosferos. Gėlavandeniai telkiniai gali būti autotrofiniai arba heterotrofiniai. Autotrofinėse sistemose CO<sub>2</sub> fiksacija viršija CO<sub>2</sub> gamybą, t. y. fotosintezės intensyvumas viršija organikos irimo, karbonatų tirpimo ir kitų procesų metu susidariusio CO<sub>2</sub> mastus. Tokiuose ežeruose ištirpusio anglies dioksido koncentracija mažesnė nei atmosferoje (dėl intensyvios CO<sub>2</sub> fiksacijos), tai reiškia, kad CO<sub>2</sub> iš atmosferos patenka į vandens ekosistemą [57]. Gilesniuose vandens sluoksniuose <sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C santykis gali būti mažesnis dėl sunkiojo vandens efekto, senos organikos irimo, todėl paviršiniai vandens sluoksniai gali būti pasendinami anglimi iš žemesniųjų sluoksnių maišantis vandeniui telkinyje. Heterotrofinėse sistemose CO<sub>2</sub> fiksacija mažiau intensyvi nei CO<sub>2</sub> gamyba. Tai reiškia, kad dėl atneštinės organikos irimo dalinis susidariusio CO<sub>2</sub> slėgis yra didesnis nei atmosferoje, todėl ežere esantis CO<sub>2</sub> difunduoja į atmosferą [58].

Atmosferos ir vandens telkinio CO<sub>2</sub> mainams daro įtaką [59]: temperatūra, vėjo greitis, ežero trofiškumas (maistinių medžiagų kiekis, lemiantis fotosintezės intensyvumą), kiek laiko per metus ežeras yra pasidengęs ledu, hidrologiniai pokyčiai, lemiantys vandens telkinyje pasikeitimo trukmę (angl. *residence time*), organinės ir neorganinės anglies importą.

Įvairiose vandens telkinio vietose rezervuaro amžius gali būti skirtingas ir skirtumai gali siekti net iki 19000 metų [8]. Rezervuaro amžius ežero centre yra mažesnis nei prie krantų – centre atmosferos-ežero vandens riba yra didesnė (didesnis sąveikos paviršiaus plotas) [8], taip pat iš intakų



(pvz., upių) ar dugninių šaltinių į vandens telkinį gali patekti „senesnės“ DIC, kuri sumažina  $^{14}\text{C}$  koncentraciją toje telkinio vietoje.

Rezervuaro amžius gali kisti laikui bėgant. Tokiems laikiniams pokyčiams įtakos gali turėti įvairūs hidrologiniai pokyčiai, klimato kaita, pakitę  $\text{CO}_2$  mainai su atmosfera, aplink telkinį esančios augalijos pokyčiai, radioanglies koncentracijos atmosferoje kitimas [7], [8]. Dėl šios priežasties, rezervuaro amžiaus kaitos tyrimai gali būti naudingi norint atkurti praeities įvykius (tiek natūralius, tiek susijusius su antropogeninės veiklos pokyčiais), dariusius įtaką vandens ekosistemai bei vieno pagrindinio elemento – C ciklui.

## 1.6 Anglis ežero dugno nuosėdose

Pagrindiniai anglies šaltiniai dugno nuosėdose yra sausumos augalai bei fiksuojamas atmosferinis  $\text{CO}_2$  [52], [59]. Anglis dugno nuosėdose gali būti organinės arba neorganinės kilmės. Tiek organinė, tiek neorganinė anglis gali būti alochtoninės (atneštinės) arba autochtoninės (vietinės) kilmės. Autochtoninė organika yra kilusi iš ežere ar aplink ežerą augančių augalų (fitoplanktono, makrofitų ir t.t.), kurie fiksuoja vandenyje ištirpusią neorganinę anglį (DIC), ir iš ežere gyvenančių organizmų. Dėl to, šių autochtoninių šaltinių izotopinė sudėtis atspindi vartojamos anglies izotopinę sudėtį. Neorganinė anglis dugno nuosėdose yra sukaupta karbonatų pavidalu.

Didžiausią dugno nuosėdų organikos dalį sudaro huminės medžiagos (angl. *humic substances*) [60], kurias sudaro didelės molekulinės masės junginiai ir kurios dalyvauja įvairiuose geocheminiuose procesuose ežerų dugno nuosėdose [61].

Humines medžiagas galima išskirti į:

1. huminą (angl. *humic acid*, HA);
2. humines rūgštis (angl. *humic acid*, HA);

Bakterijos bei įvairūs mikroorganizmai nuolat ardo ir perdirba ežere nusėdančias organines medžiagas. Šioms frakcijoms daro įtaką nuolat vykstantys procesai:

- didelių organinių molekulių dekompozicija į mažesnius junginius (pvz., į karboksirūgštis,  $\text{CO}_2$  ar bikarbonatus), daugėjant polinių ir jonizuojamų funkcinių grupių;
- mažesnės molekulinės masės junginių jungimasis į mažiau reaguojančių darinių struktūrą [62].

Nustatyta, kad kuo senesnės huminės medžiagos, tuo jos daugiau savo struktūroje turi kondensuotų aromatinių žiedų [61].

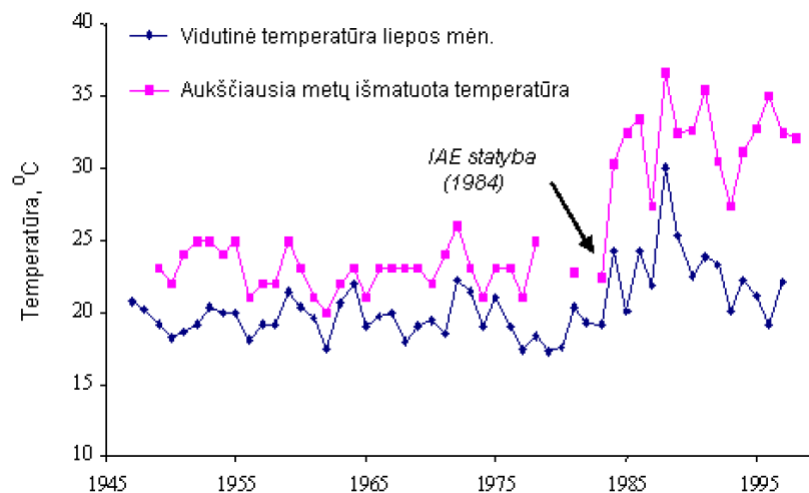
Humines rūgštis sudaro didelės sferinės molekulės, kurias sudarančios heterogeninės dalys yra tarpusavyje susijungusios skirtingais kovalentiniais ryšiais [61]. Netirpios rūgštiniuose, bet tirpios šarminiuose tirpaluose huminės rūgštys savo struktūroje turi ir hidrofilinių, ir hidrofobinių grupių [63]. Dėl šios priežasties huminės rūgštys gali prisijungti organinius junginius ir neorganinius jonus [63], [64]. Iš dugno nuosėdų huminės rūgštys yra išskiriamos pasitelkiant ekstrakciją šarmu. HA sudėtyje esančios ir deguonies turinčios funkcinės grupės yra jonizuojamos terpėje, kurios pH >13, todėl žymiai padidėja jų tirpumas vandeniniuose tirpaluose [62].

Huminas yra nei šarminiuose, nei rūgštiniuose tirpaluose netirpi frakcija [62]. HM sudarančios molekulės neturi jonizuojamų funkcinų grupių arba šios grupės yra mineralų apsaugotos nuo šarmo poveikio. Dėl didelės molekulinės masės ir molekulių dydžio huminas yra lėčiausiai reaguojanti į pokyčius ekosistemoje ir pati nemobiliausia frakcija.

## 1.7 Drūkšių ežeras

Drūkšiai yra didžiausias ežeras Lietuvoje ir Ignalinos atominės elektrinės eksploatavimo periodu buvo naudojamas IAE pirmojo bei antrojo energetinių blokų aušinimui. Ežeras turi 11 intakų, o iš ežero vanduo išteka vienintele upe – Prorva [65]. Į ežerą taip pat patenka apvalytos buitinės nuotekos iš Ignalinos AE ir Visagino miesto bei neapvalytos lietaus nuotekos, surenkamos IAE teritorijoje [66]. Bendrasis ežero paviršiaus plotas – 49 km<sup>2</sup>, bendrasis vandens tūris yra apie 369 · 10<sup>6</sup> m<sup>3</sup>. Pietinė ežero dalis yra sekiausia, o šiaurinei, centrinei ir vakarinei ežero dalims būdingi didesni gyviai. Drūkšių ežerui būdinga pakankamai lėta vandens apykaita [65].

Ignalinos AE eksploatacijos periodu Drūkšių vandens lygis ir kiekis, reikalingas AE aušinimui, buvo palaikomas ežero ištakose esančios hidroelektrinės šliuzų-reguliatorių. Ši hidroelektrinė buvo pastatyta 1953 m., o nuo 1981 metų ji buvo naudojama tik atitinkamam vandens lygiui palaikyti. Vieno energetinio bloko aušinimui sunaudojama apie 80 m<sup>3</sup>/s ežero vandens, dviejų blokų – 135 m<sup>3</sup>/s žiemą ir 160 m<sup>3</sup>/s vasarą [67]. Į ežerą iš AE aušinimo įrenginių išleidžiamas pašildytas vanduo pakėlė ežero temperatūrą vidutiniškai 3-4 °C (1.7 pav.) [65]. Dėl šios priežasties tam tikra ežero dalis žiemą neužšaldavo. Šiltuoju metų periodu (gegužės – rugpjūčio mėn.) garavimas iš ežero padidėjo vidutiniškai 49 procentais [65].



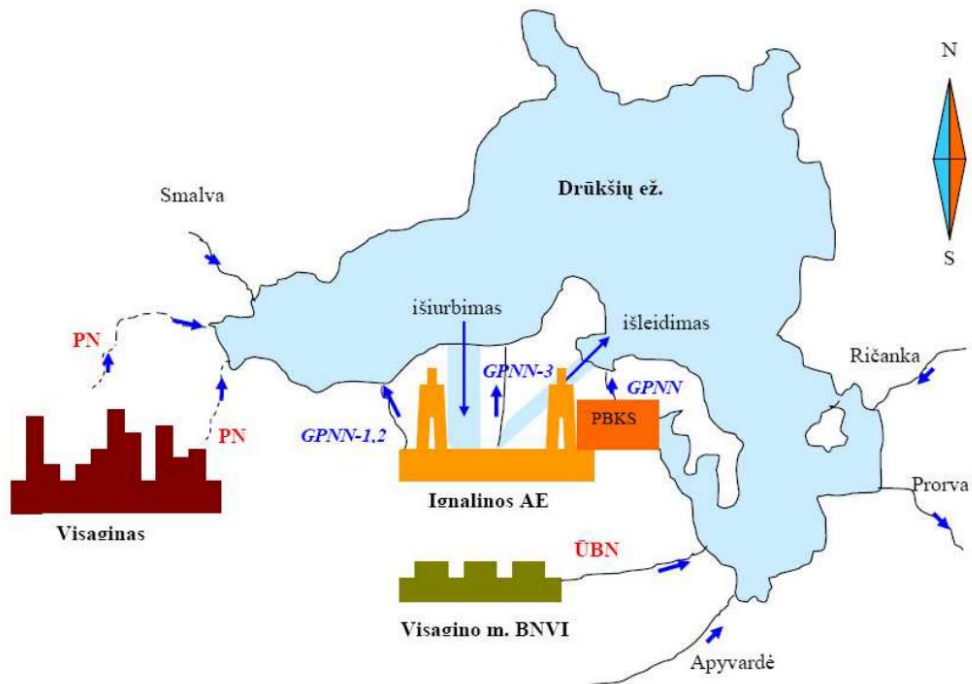
**1.7 pav.** Drūkšių ežero vandens paviršiaus temperatūros iki ir po IAE pastatymo. Duomenys iš [65]

Kartu su nuotekomis iš Visagino nuotekų valymo įrenginių į ežerą patenka ir maistinės medžiagos – azotas ir fosforas. Kai Ignalinos AE veikė maksimaliu pajėgumu (iki 1991 m.), kasmet į ežerą patekdavo iki 1 000 tonų organinės anglies, iki 700 tonų azoto (N) ir iki 50 tonų fosforo (P) junginių [65]. Vėliau Visagino miesto ir Ignalinos AE ūkinės-buitinės kanalizacijos nuotekų valymo įrenginiai buvo rekonstruoti taip, kad būtų užtikrintas nuotekų valymas nuo azoto ir fosforo junginių. Iki valymo įrenginių, eksploatuojamų nuo 1979 m., rekonstrukcijos azoto bei fosforo junginiai iš nuotekų nebuvo valomi [68]. Šie įrenginiai dar kartą buvo atnaujinti 2010 m., todėl vėlesniais metais pastebimas žymus išmetamų azoto ir fosforo junginių koncentracijų sumažėjimas.

Tiek padidėjusi temperatūra, tiek papildomų maistinių medžiagų patekimas paskatino Drūkšių ež. eutrofikaciją. Ežeras iš mezotrofinio (su vidutiniu maistinių medžiagų kiekiu ir vidutine biologine produkcija) tapo eutrofiniu (su dideliu maistinių medžiagų kiekiu ir didele biologine produkcija) [65]. Šie veiksniai nulėmė pokyčius ežero žuvų populiacijose. Prieš pradedant Ignalinos AE eksploataciją ežere buvo aptinkama 23-26 žuvų rūšių, o eksploatacijos metu tik 14. Sustabdžius IAE veiklą ežere aptinkama iki 20 žuvų rūšių [69].

Apibendrinant galima teigti, kad Ignalinos atominės elektrinės eksploatavimo laikotarpiu pokyčius ežero ekosistemoje nulėmė (1.8 pav.):

- ežero vandens masės šildymas dėl IAE šiluminės taršos;
- iš Visagino nuotekų valymo įrenginių į ežerą patenkančios maistinės medžiagos – azotas ir fosforas;
- teršalai, į ežerą patenkantys kartu su Visagino paviršinėmis nuotekomis.



**1.8 pav.** Aušinimo vandens ir buitinių nuotekų išleidimo į Drūkšių ežerą schema [68]

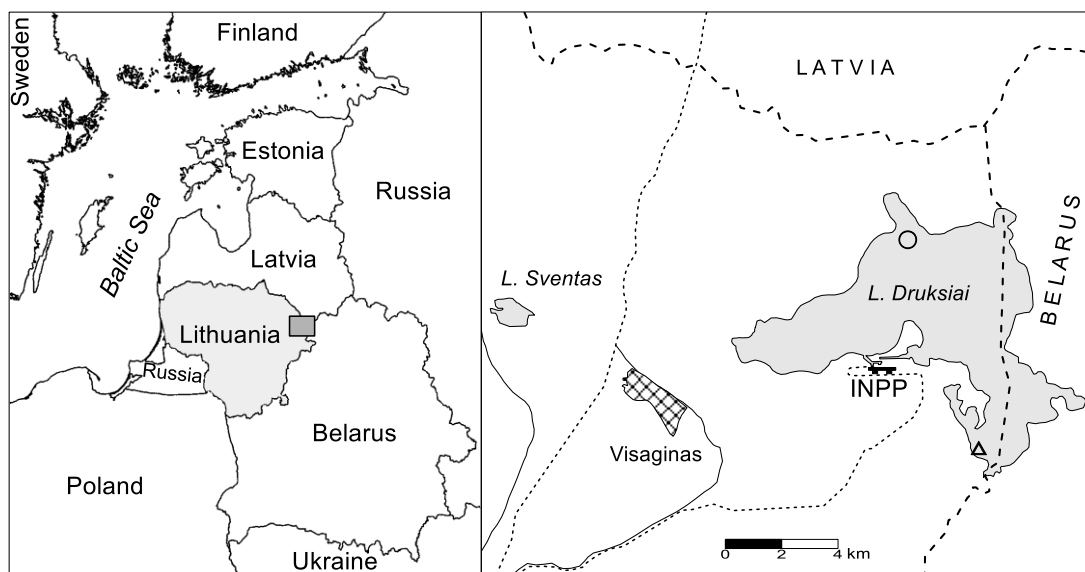
*PN – paviršinės nuotekos, GPNN - gamybinių ir paviršinių nuotekų nuotakynas, ŪBN - ūkinė buitinė kanalizacija (komunalinės nuotekos), PBKS - panaudoto branduolinio kuro saugykla, BNVI – buitinių nuotekų valymo įrenginiai*

Nutraukus dirbtinį Drūkšių ežero šildymą bei užtikrinus į ežerą išleidžiamų buitinių nuotekų valymą, tikimasi, kad Drūkšių ežere, kuris IAE reikmėms buvo naudojamas kaip aušintuvas, palaipsniui bus atstatyta pirminė ekosistema ir ežeras grįš į būseną, buvusią prieš Ignalinos AE eksploataciją [68].

## 2. Tyrimo metodika

### 2.1 Bandinių paruošimas

Ežero dugno nuosėdų kolonėlės buvo paimitos iš Drūkšių ežero šiaurinės dalies bendradarbiaujant kartu su Gamtos tyrimų centro Branduolinės geofizikos ir radioekologijos laboratorijos mokslininkais (2.1 pav.). Po paėmimo dugno nuosėdų kolonėlės buvo padalintos į 1 cm storio sluoksnius, kurie buvo liofilizuoti (džiovinti šaltyje).



**2.1 pav.** Dugno nuosėdų kolonėlių ėmimo vieta: 55°38'49,04" šiaurės platumos, 26°35'6,63" rytų ilgumos, INPP – Ignalinos AE

Prieš radioanglies matavimus dugno nuosėdų bandiniuose, juos būtina chemiškai paruošti – pašalinti dugno nuosėdose esančią neorganinę anglį (karbonatų pavidalu) bei išskirti atskiras frakcijas. Cheminio paruošimo metodika buvo pasirinkta pagal F. Brock publikaciją [70], išskiriant humino (HM) ir huminių rūgščių (HA) frakcijas.

Iš pradžių pasveriami po maždaug 300 mg kiekvieno sluoksnio medžiagos į 15 ml talpos centrifuginius mėgintuvėlius. Tada atliekama rūgštis-šarmas-rūgštis (angl. *acid-base-acid*, ABA) paruošimo procedūra (visi etapai vyksta 75 °C temperatūroje):

1. dugno nuosėdų bandiniai per naktį laikomi 5 ml 1 M HCl tirpale. Šio etapo esmė – karbonatų pašalinimas;
2. bandiniai yra užpilami 5 ml 0,2 M NaOH tirpalu ir laikomi 1 val. Šiame etape atskiriamos dvi frakcijos: HM, kuris netirpsta šarme, bei HA, kurios tirpsta;
3. išskiriamos HM ir HA frakcijos:
  - a. HA nusodinamos nupiltą NaOH tirpalą parūgštinus 6 M HCl tirpalu;

b. likusi HM frakcija užpilama 5 ml 1 M HCl tirpalu ir laikoma 1 val.

Po apdorojimo kiekvienu reagentu bandiniai buvo 5 kartus plaunami pirmos klasės švarumo vandeniu, kol pasiekiamas pH ~7 (neutralu).

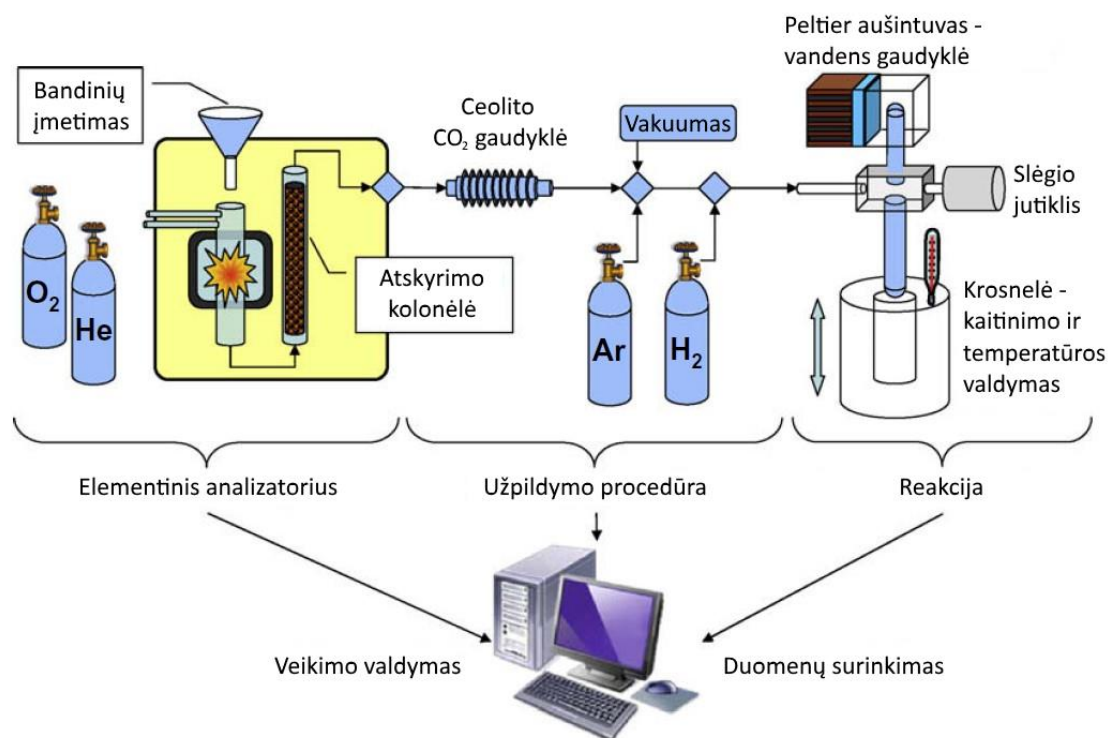
4. Po paskutinio plovimo bandiniai buvo paliekami džiuoti per naktį 60 °C temperatūroje, apsemti tirpalo, kurio pH ~3.

Bentosinių ir pelaginių žuvų žvynų bandiniai, norint pašalinti karbonatus, buvo 2 min pamerkami į 1.2 M HCl tirpalą, o po to nuplaunami pirmos klasės švarumo vandeniu [71]

Išdžiovinti bandiniai pasveriami ir suvyniojami į alavo kapsules – paruošiami grafitizavimo etapui.

## 2.2 Grafitizavimo sistema AGE 3 ir jos veikimo principas

Po cheminio apdorojimo bandiniai ruošiami AMS matavimams – grafitizuojami (bandinyje esančią anglį paverčiant į CO<sub>2</sub> dujas ir sukaupiant grafito pavidalu). Automatinės grafitizavimo sistemos AGE 3 schema pavaizduota 2.2 pav. Sistemą AGE 3 sudaro elementinis analizatorius (angl. *elemental analyser*, EA) ir grafitizatorius.



2.2 pav. Supaprastinta AGE 3 grafitizavimo sistemos schema. Adaptuota pagal [72]

Grafitizavimą su grafitizavimo sistema AGE 3 galima suskirstyti į kelis etapus [73]. Pirmasis etapas – sistemos paruošimas. Grafitizacijos reakcijai įvykdyti naudojamas katalizatorius – geležies milteliai (Alfa Aesar, CAS Nr. 7439-89-6). Vienam bandiniui sugrafitizuoti reikia maždaug apie 5 mg šių geležies miltelių, kurie yra suberiami į specialius borosilikatinius mėgintuvėlius – reaktorius. Šiuose mėgintuvėliuose ir bus vykdoma grafitizacijos reakcija. Norint suaktyvinti katalizatorių ir pašalinti užteršimą anglies junginiais geležis yra pakaitinama iki 500 °C ir grynu vandeniliu redukuojama. Reaktoriuje buvusios priemaišos šio etapo metu yra oksiduojamos į lakius junginius, kurie kartu su vandens garais yra pašalinami.

Antrasis etapas yra bandinyje esančios anglies vertimas į CO<sub>2</sub> dujas. Šio etapo metu bandinys yra sudeginamas deguonies pertekliuje elementinio analizatoriaus oksidacinėje kolonėlėje. Kaip nešančiosios dujos naudojamas helis. Atskyrimo kolonėlėje, kuri pagaminta iš specialaus sorbento, degimo metu susidaręs CO<sub>2</sub> atskiriamas nuo kitų junginių, pavyzdžiui, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub>. Išėjusios iš kolonėlės dujos patenka į šiluminio laidumo detektorių (angl. *thermal conductivity detector*, TCD), kurio pagalba nustatomas anglies kiekis bandinyje.

Iš detektoriaus išėjusios CO<sub>2</sub> dujos nukreipiamos į molekulinę gaudyklę, pagamintą iš 13X ceolito (kurį sudaro Na<sub>2</sub>O, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>). Ceolito gaudyklėje CO<sub>2</sub> dujos yra adsorbuojamos. Kai visas bandinio degimo metu susidaręs anglies dioksidas sukaupiamas gaudyklėje, ji yra pakaitinama iki 450 °C ir įvyksta CO<sub>2</sub> desorbcija – CO<sub>2</sub> dujos išlaisvinamos iš ceolito. Besiplėsdamos dujos pasiekia tam tikrą reaktorių. Galiausiai į reaktorių yra prileidžiama vandenilio dujų, kad būtų pasiektas optimalus H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> dujų slėgių santykis 2,3.

Paskutinis etapas yra grafitizavimo reakcija [73], kurią supaprastintai galima aprašyti viena Bosh lygtimi (2.2.1). Kai užpildyti visi reaktoriai, įjungiami Peltier aušintuvai ir reakcijos metu reaktoriuose yra palaikoma optimali 580 °C temperatūra.



Grafitizavimo reakcijoje labai svarbų vaidmenį atlieka geležies katalizatorius [73]. Esant pakankamiems anglies kiekiams geležis gali būti transformuojama į geležies karbidus ar jų junginius su magnetitu (2.2.2)-(2.2.4).



Kai grafitizavimas vykdomas didesnėje nei 573 °C, susidaro geležies (II) oksidai (FeO) [73]. Tokiu atveju galimos reakcijos atrodo taip:



Vykdamas grafitizavimo reakcijas geležis redukuoja CO<sub>2</sub> į CO, o vandenilis redukuoja susidariusį Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> atgal į Fe (aukštesnėse temperatūrose į FeO). Geležies redukcija su vandeniliu regeneruoja Fe sistemoje – leidžia geležiai veikti kaip katalizatoriui. Kai sunaudojamas visas H<sub>2</sub>, tuomet tik Fe atlieka reduktoriaus vaidmenį ir ji palaipsniui virsta geležies oksidais ir karbidais. Dėl šios priežasties, optimaliam grafitizacijos reakcijos įvykdymui reikalingas pakankamas vandenilio kiekis. Esant per mažai vandenilio kyla rizika, kad reakcija gali būti nepilnai įvykdyta. Kita vertus, esant per dideliu H<sub>2</sub> kiekiui gali susidaryti nepageidaujami angliavandeniliai:



Šios reakcijos žymiai sumažina grafito išėigą.

Taip pat yra labai svarbus vandenilio ir vandens santykis reakcijos spartai bei išėigai. Reaktoriuje esant per dideliu vandens garų kiekiui susidaro metanas bei grafitas virsta į CO<sub>2</sub>:



Peltier aušintuvų pagalba reakcijos metu susidaręs vanduo yra surenkamas virš reaktorių ir tolimesnėse reakcijose nedalyvauja.



Vykstant grafitizacijos reakcijoms dujų slėgis reaktoriuose mažėja. Kai slėgis pasiekia tam tikrą vertę ir daugiau nebekinta, tada grafitizavimo reakcija laikoma pasibaigusia. Tuomet į reaktorius prileidžiama inertinių dujų – argono ir reaktoriai gali būti nuimami nuo grafitizatoriaus mėgintuvėlių laikiklių.

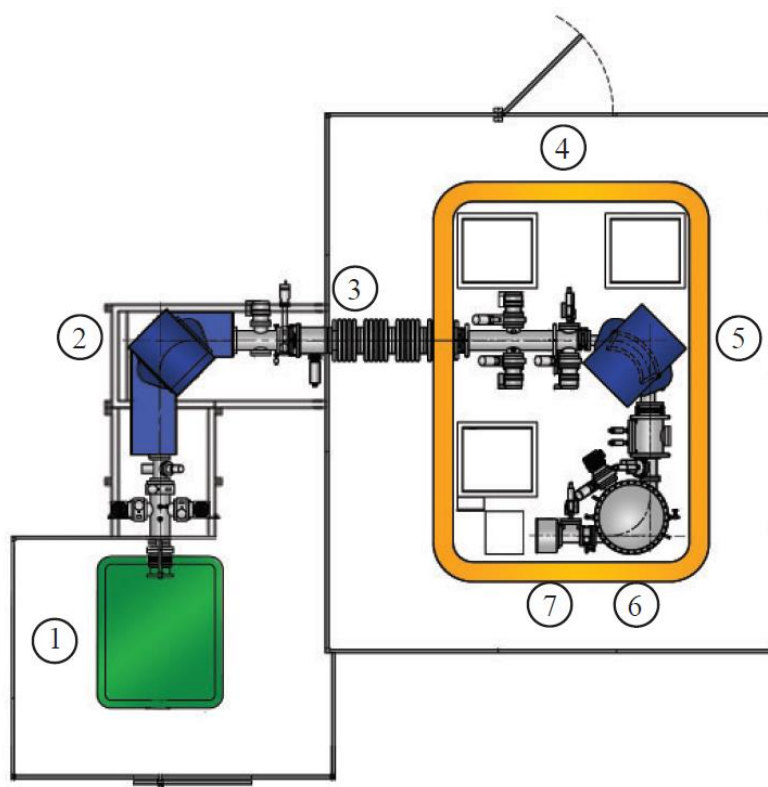
## 2.3 SSAMS – vienos pakopos greitintuvo masių spektrometras

**Greitintuvo masių spektrometrija.** Šis metodas buvo sukurtas siekiant išspręsti problemas, su kuriomis susiduriama atliekant retųjų izotopų matavimus beta spektrometriniu metodu ar įprastais masių spektrometrijos metodais. Šias problemas paprasčiau galima paaiškinti pasinaudojant radioanglies pavyzdžiu. 1 grame šiuolaikinės anglies yra maždaug  $6 \cdot 10^{10}$   $^{14}\text{C}$  atomų. Dėl to, skaičiuojant beta skilimus, galima užfiksuoti tik 14 skilimų per minutę. Norint pasiekti bent 0,5 % tikslumą, matavimai pastaruoju metodu gali užtrukti net 48 valandas. Kita vertus, pasinaudojant greitintuvo masių spektrometrija tokį tikslumą galima pasiekti per 10 min, o ir medžiagos reikia žymiai mažiau – analizei gali užtekti net ir 1 mg [74].

Įprasti masių spektrometrai gali nustatyti didesnę radioanglies atomų dalį bandinyje nei beta spektrometrija, tačiau praktikoje  $^{14}\text{C}$  jonai yra maskuojami  $^{14}\text{N}$ , kurio aplinkoje yra žymiai daugiau nei radioanglies atomų. Taip pat išmatuoti  $^{14}\text{C}$  gali trukdyti molekuliniai jonai, tokie kaip  $^{13}\text{CH}$ ,  $^{12}\text{CH}_2$ ,  $^{12}\text{CD}$  ir  $^7\text{Li}_2$  [74].

Greitintuvo masių spektrometrijoje trukdančių izobarų problema išsprendžiama naudojant neigiamą jonizaciją, nes stabilūs neigiami  $^{14}\text{N}$  izobaro jonai nesusiformuoja. Jų gyvavimo trukmė yra mažiau nei  $10^{-10}$  s [75]. Tai yra žymiai trumpiau negu jonams užtrunka pasiekti greitimo pakopą. Molekuliniai jonai yra suardomi pasinaudojant molekuliniais skaidytuvais. Plačiau apie juos šiek tiek vėliau.

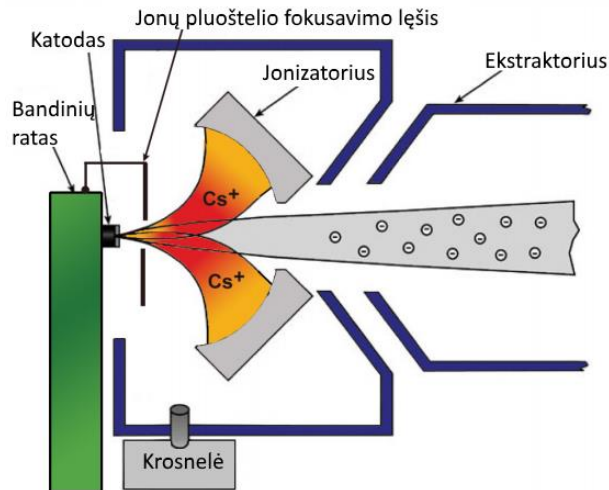
Fizinių ir technologijos mokslų centre veikia JAV įmonės National Electrostatics Corporation suprojektuotas ir surinktas vienos pakopos greitintuvo masių spektrometras (angl. *single stage accelerator mass spectrometer*, SSAMS), turintis 240 kV greitimo pakopą. Šiuo prietaisu galima matuoti ne tik radioanglį, bet ir kitus izotopus, pavyzdžiui,  $^{26}\text{Al}$  [76]. SSAMS principinė schema pavaizduota 2.3 pav.



**2.3 pav.** Vienos pakopos greitintuvo masių spektrometro schema [77]. 1 – jonų šaltinis, 2 – mažos energijos magnetas, 3 – 240 kV greitavimo pakopa, 4 – Faradėjaus narvas, 5 – didelės energijos magnetas, 6 – elektrostatinis analizatorius, 7 – puslaidininkinis  $^{14}\text{C}$  detektorius

Atlikus bandinių grafitizavimą gautas grafitas specialaus preso pagalba suspaudžiamas į aliumininius katodus, kurie dedami į 39 pozicijų bandinių ratą. Šis ratas yra statomas į greitintuvo masių spektrometro jonų šaltinį.

**Jonų šaltinis.** Šio tipo masių spektrometruose teigiamiems jonams generuoti yra naudojamas cezis (2.4 pav.). Visų pirma, krosnelė, kurioje yra cezis, pakaitinama iki  $80\text{ }^{\circ}\text{C}$  – taip sukuriama cezio garų debesis. Dalis garų kondensuojasi ant šaldomo katodo paviršiaus, dalis atsiduria ant sferinių jonizatorių paviršių, kurie pagaminti iš tantalo. Cezio atomai patekę ant kaitinamų sferinių jonizatorių yra jonizuojami – virsta teigiamais Cs jonais, kurie yra pagreitinami, sufokusuojami ir nukreipiami į katodo paviršių.  $5\text{ keV Cs}^+$  jonai išmuša bandinį sudarančius atomus, kurie, dėl cezio savybės lengvai atiduoti elektronus, juos prisijungia ir tampa neigiamais jonais ( $\text{C}^-$ ). Plonytis ant katodo paviršiaus susikondensavusio cezio sluoksnis padidina neigiamų jonų gamybą [78]. Galiausiai neigiami jonai yra sufokusuojami ir ekstraktoriaus pagalba yra pagreitinami – suformuojamas neigiamų jonų pluoštelis.



**2.4 pav.** Vienos pakopos greitintuvo masių spektrometro jonų šaltinio schema. Adaptuota pagal [79]

Už jonų šaltinio esančiame Faradėjaus detektoriuje registruojama jonų pluoštelio srovė. Jei srovė pakankamai stipri, jonų pluoštelis nukreipiamas į pirmąjį magnetą (2.3 pav. pažymėtas 2 numeriu). Į 240 kV greitimo pakopą magnetu nukreipiami tik 12, 13 ir 14 a.m.v. (atominės masės vienetas) jonų pluošteliai. Už pirmojo magneto yra elektrostatinis lęšis (angl. *einzel lens*), kuris prieš greitimo pakopą vėl sufokusuoja jonų pluoštelį, kad jam patekus į molekulinį skaidytuvą būtų kuo mažesni nuostoliai [74].

**Greitimo pakopa ir molekulinis skaidytuvas.** SSAMS sistema veikia maždaug 10 Hz dažniu. Tai reikštų, kad 12 a.m.v. jonų nukreipimas į greitimo pakopą trunka 300  $\mu$ s, 13 a.m.v. – 1000  $\mu$ s, o šiuo atveju retąjį izotopą ( $^{14}\text{C}$ ) atitinkančių jonų – maždaug apie 100 ms. Greitimo pakopą pasiekę jonai yra pagreitinami iki maždaug 275 keV [77].

Iš greitimo pakopos jonų pluoštelis patenka į molekulinį skaidytuvą. Jis yra užpildytas inertinėmis dujomis (pavyzdžiui,  $\text{N}_2$  ar He, bet plačiausiai naudojamas Ar [74]). Greitai judančių jonų pluoštelis sąveikaudamas su dujomis netenka elektronų ir  $\text{C}^-$  virsta teigiamais jonais. Taip pat šio etapo metu yra suskaidomi molekuliniai jonai, tokie kaip  $^{12}\text{CH}_2^-$  ir  $^{13}\text{CH}^-$ , kurie vėliau galėtų trukdyti  $^{14}\text{C}$  detektavimui.

**Detektoriai.** Pro molekulinį skaidytuvą praėję jonai didelės energijos magnetu yra atlenkiami  $90^\circ$  kampu.  $^{12}\text{C}^+$  bei  $^{13}\text{C}^+$  jonai yra nukreipiami į už magneto esančius Faradėjaus detektorius, kuriais išmatuojamos jonų pluoštelių kuriamos srovės.  $^{14}\text{C}^+$  jonai patenka į elektrostatinį analizatorių, kuris tik šiuos jonus  $90^\circ$  kampu nukreipia į puslaidininkinį Ge detektorių. Detektoriuje užregistruojamas į detektorių pataikiusių radioanglies jonų skaičius. Matavimų rezultatai išreiškiami pasinaudojant  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  ir  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  santykiais.

**Radioanglies matavimo vienetai.** Radioanglies koncentracija tiriamojame medžiagoje gali būti išreikšta įvairiais būdais, pavyzdžiui, savituoju aktyvumu (Bq/kg C) ar aktyvumų santykiais (aktyvumo bandinyje ir etalone santykiu). Plačiausiai naudojami matavimo vienetai yra  $\Delta^{14}\text{C}$ , pMC,  $F_m$ ,  $f_m$ ,  $F^{14}\text{C}$  bei savitasis aktyvumas A. Minėti vienetai plačiau aprašyti K. Stenström ir kt. straipsnyje [80]. Šiame darbe  $^{14}\text{C}$  koncentracija bandiniuose buvo išreiškiama pMC (angl. *percent Modern Carbon*) vienetais. 100 pMC yra lygu 226 Bq/kg C, tai atitiktų radioanglies koncentraciją atmosferoje 1950 metais.

Kaip jau minėta, vienos pakopos masių spektrometru yra išmatuojamos stabiliųjų anglies izotopų jonų ( $^{12}\text{C}^+$  ir  $^{13}\text{C}^+$ ) kuriamos srovės bei  $^{14}\text{C}^+$  jonai, pataikę į detektorius. Dėl to, radioanglies kiekis bandinyje yra išreiškiamas pasinaudojant izotopiniais santykiais –  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  ar  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ , kurie apskaičiuojami taip:

$$r = \frac{n}{p}, \quad (2.3.1)$$

čia  $r$  – retojo izotopo santykis (šiuo atveju  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  arba  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ ),  $n$  – per matavimo trukmę į detektorius pataikiusių  $^{14}\text{C}^+$  jonų skaičius,  $P$  – Faradėjaus detektoriuose užregistruotų  $^{12}\text{C}^+$  ar  $^{13}\text{C}^+$  jonų skaičius per jų registravimo trukmę. Jeigu atliekami keli to paties bandinio matavimai, apskaičiuojamas jų svertinis vidurkis:

$$R_{S_k} = \frac{\sum_{i=1}^K q_i r_i}{\sum_{i=1}^K q_i}, \quad (2.3.2)$$

čia  $q_i$  –  $i$ -ojo matavimo metu  $^{12}\text{C}^+$  ar  $^{13}\text{C}^+$  jonų kuriama srovė, padauginta iš matavimo laiko, o  $r_i$  –  $i$ -ojo matavimo metu nustatytas retojo izotopo santykis (pagal (2.3.1) formulę),  $K$  – matavimų skaičius. Taip pat atimamas fonas (bandinio, kuriame yra labai mažai radioanglies, signalas):

$$A_{S_k} = R_{S_k} - R_{Bkg}, \quad (2.3.3)$$

čia  $R_{Bkg}$  – suvidurkintas foninio bandinio izotopinis santykis.

Norint kiek įmanoma tiksliau nustatyti radioanglies koncentraciją tiriamame bandinyje, reikia įvertinti izotopinio persiskirstymo (frakcionavimosi) efektą, kuris apibūdinamas kaip vieno izotopo praturtinimas (ar nuskurdinimas) lyginant su kitu vykstant cheminiams ar fizikiniams procesams. Ne visi bandiniai pasireiškia vienodu frakcionavimusi. Vieni gali būti praturtinti ar nuskurdinti sunkesniaisiais izotopais daugiau nei kiti. Pavyzdžiui, C3 augalai (pvz., pušys) yra maždaug 1,5 %

nuskurdinti  $^{13}\text{C}$  izotopu lyginant su  $\text{C4}$  augalais (pvz., kukurūzais). Kad būtų pašalinta izotopinio persiskirstymo įtaka matavimo rezultatams, tiriamų bandinių  $\delta^{13}\text{C}$  vertės normalizuojamos į tam tikrą vertę. Dėl šios priežasties, atliekant  $^{14}\text{C}$  matavimus greitintuvo masių spektrometru nustatomi ne tik  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ , bet ir  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  santykiai bandiniuose.  $\delta^{13}\text{C}$  vertės apibrėžimas:

$$\delta^{13}\text{C} = \left[ \frac{\left(\frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}}\right)_{\text{bandinys}} - \left(\frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}}\right)_{\text{etalonas}}}{\left(\frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}}\right)_{\text{etalonas}}} \right] \cdot 1000\text{‰}, \quad (2.3.4)$$

čia  $\left(\frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}}\right)_{\text{bandinys}}$  – izotopinis santykis bandinyje,  $\left(\frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}}\right)_{\text{etalonas}}$  – izotopinis santykis etalone. Kuo tiriamoji medžiaga daugiau turi  $^{13}\text{C}$  izotopo, tuo jos  $\delta^{13}\text{C}$  vertė yra didesnė.

$\delta^{13}\text{C}$  korekcijos bei normalizavimo procedūros metu radioanglies koncentracija yra pataisoma į tokią, kokia būtų tuo atveju, jeigu bandinio  $\delta^{13}\text{C}$  vertė būtų  $-25\text{‰}$ . Šioje vietoje galima pasinaudoti dydžiu  $D_k$ , kuris vadinamas  $\delta^{13}\text{C}$  korekcijos faktoriumi:

$$D_k = \frac{1 + \left(\frac{-25}{1000}\right)}{1 + \left(\frac{\delta_k^{13}\text{C}}{1000}\right)} = \frac{0,975}{1 + \left(\frac{\delta_k^{13}\text{C}}{1000}\right)}, \quad (2.3.5)$$

čia  $\delta_k^{13}\text{C}$  – išmatuota  $\delta^{13}\text{C}$  vertė, kuri nustatoma pasinaudojant šia formule:

$$\delta_k^{13}\text{C} = 1000 \times \left( \frac{\rho_k}{\rho_{\text{STD}}} - 1 \right) + \left( \frac{\rho_k}{\rho_{\text{STD}}} \times \delta_{\text{STD}}^{13}\text{C} \right), \quad (2.3.6)$$

čia  $\rho_k$  ir  $\rho_{\text{STD}}$  – išmatuotas  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  santykis atitinkamai bandinyje ir etalone,  $\delta_{\text{STD}}^{13}\text{C}$  – žinoma etalono  $\delta^{13}\text{C}$  vertė. Apskaičiuojamas  $\delta^{13}\text{C}$  pataisytas radioanglies aktyvumas  $A_{S_k}[-25]$  bandinyje  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  santykiui (laužtiniuose skliaustuose nurodyta iki kurios  $\delta^{13}\text{C}$  vertės daromas pataisymas):

$$A_{S_k}[-25] = A_{S_k} D_k^2 = A_{S_k} \left( \frac{0,975}{1 + \left(\frac{\delta_k^{13}\text{C}}{1000}\right)} \right)^2, \quad (2.3.7)$$

o  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$  santykiui:

$$A_{S_k}[-25] = A_{S_k} D_k = A_{S_k} \left( \frac{0,975}{1 + \left( \frac{\delta_k^{13}\text{C}}{1000} \right)} \right) \quad (2.3.8)$$

Galiausiai atliekamas normalizavimas į pasirinktą etaloną pasinaudojant normalizacijos konstanta A0N ir matavimo rezultatai išreiškiami pMC:

$$\text{pMC} = \frac{A_{S_k}[-25]}{A0N} \cdot 100 \quad (2.3.9)$$

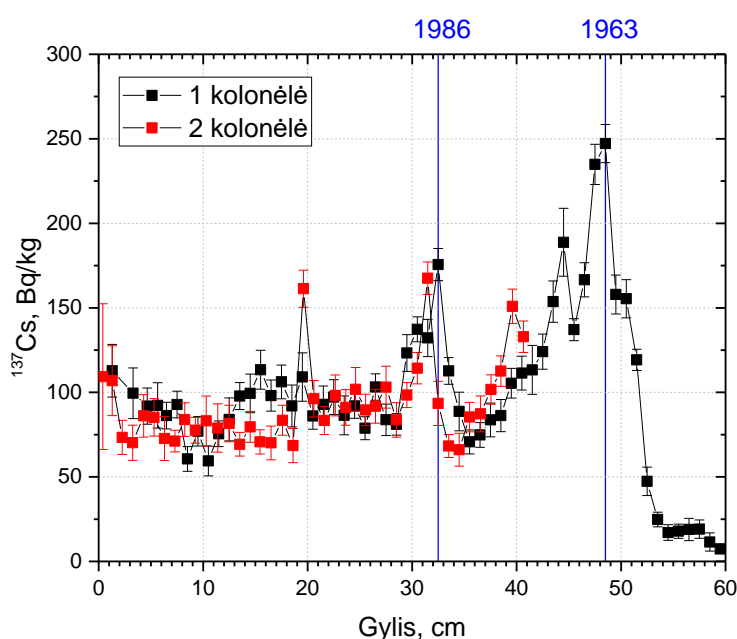
Normalizacijos konstanta naudojant įvairius etalonus yra skirtinga, pavyzdžiui, IAEA-C3 etalonui yra  $A0N = 1,2941 \cdot A_{C3}[-25]$ , o IAEA-C7 –  $A0N = 0,4954 \cdot A_{C7}[-25]$ ; šiose išraiškose  $A_{C3}[-25]$  ir  $A_{C7}[-25]$  yra  $\delta^{13}\text{C}$  pataisyti radioanglies aktyvumai pagal  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  arba  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$  santykius, atitinkamai IAEA-C3 bei IAEA-C7 etalonuose.

**Etalonišės medžiagos.** Šiame darbe matavimo kokybė užtikrinama bei atliekamas kalibravimas pasinaudojant etalonišėmis medžiagomis: IAEA-C3, IAEA-C7 ir IAEA-C9. IAEA-C3 etalonas yra celiuliozė, pagaminta 1989 metais iš maždaug 40 metų amžiaus medžių, nukirstų Švedijoje [81]. Rekomenduojama išmatuota  $^{14}\text{C}$  koncentracijos vertė šiame etalone yra  $129,41 \pm 0,06$  pMC. IAEA-C7 etalonišė medžiaga yra oksalo rūgštis, pagaminta iš sintetinės oksalo rūgšties, sumaišytos su natūralia [82]. Nustatyta šio etalono  $^{14}\text{C}$  vertė yra  $49,53 \pm 0,12$  pMC. IAEA-C9 yra beveik fosilija virtęs pietinis agatmedis (*Agathis australis*), rastas Naujosios Zelandijos pelkėje [83]. Priimta, kad radioanglies koncentracija šioje medžiagoje yra intervale 0.12-0.21 pMC.

### 3. Rezultatai ir jų aptarimas

Šiame darbe buvo tiriamos dvi dugno nuosėdų kolonėlės, paimtos iš Drūkšių ežero šiaurinės dalies, ir, jomis pasinaudojant, analizuojami radioanglies koncentracijos pokyčiai Drūkšių ežere laikui bėgant. Kadangi dugno nuosėdų storumė formavosi palaipsniui nusėdant medžiagai iš vandens ant dugno paviršiaus, pirmoji kolonėlė apima laikotarpį nuo 1947 iki 2013 metų, t. y. iki Ignalinos AE atidarymo ir iškart po jos uždarymo [84]. Antroji kolonėlė apima laikotarpį 1978-2020. Antroji kolonėlė buvo tirama siekiant įvertinti ežero sistemoje vykusius anglies ciklo pokyčius po IAE uždarymo. Be to, norėta patikrinti, ar antrojoje kolonėlėje 2000-2009 metais bus užregistruotas  $^{14}\text{C}$  koncentracijos padidėjimas dugno nuosėdų frakcijose, kuris buvo pastebėtas tiriant pirmąją kolonėlę.

$^{137}\text{Cs}$  (3.1 pav.) ir  $^{210}\text{Pb}$  savitųjų aktyvumų matavimų duomenys Drūkšių ežero dugno nuosėdų sluoksniuose buvo gauti iš Gamtos tyrimų centro Branduolinės geofizikos ir radioekologijos laboratorijos mokslininkų. Taip pat šie sluoksniai buvo sudatuoti pagal pastovaus sedimentacijos greičio (angl. *constant rate of supply*, CRS) metodiką. Pirmosios kolonėlės radiocezio duomenys pateikti [84] darbe bei 3.1 pav.  $^{137}\text{Cs}$  savitojo aktyvumo priklausomybės nuo antrosios dugno nuosėdų kolonėlės sluoksnio gylio grafike matoma viena radiocezio padidėjimo smailė, esanti 31,5 cm gylyje ir atitinkanti  $^{137}\text{Cs}$  padidėjimą atmosferoje dėl katastrofos Černobylio AE 1986 metais. Kita grafike matoma smailė yra 19,5 cm gylyje, kuris atitinka maždaug 2002 m. Šis radiocezio padidėjimas galėtų būti susijęs su padidėjusiais  $^{14}\text{C}$  išmetimais į ežerą apie 2001 metus, tačiau I-ojoje kolonėlėje toks  $^{137}\text{Cs}$  padidėjimas nebuvo užregistruotas [84].



**3.1 pav.**  $^{137}\text{Cs}$  savitojo aktyvumo priklausomybė nuo dugno nuosėdų sluoksnio gylio Drūkšių ežere (I-ojoje [84] ir II-ojoje dugno nuosėdų kolonėlėse)

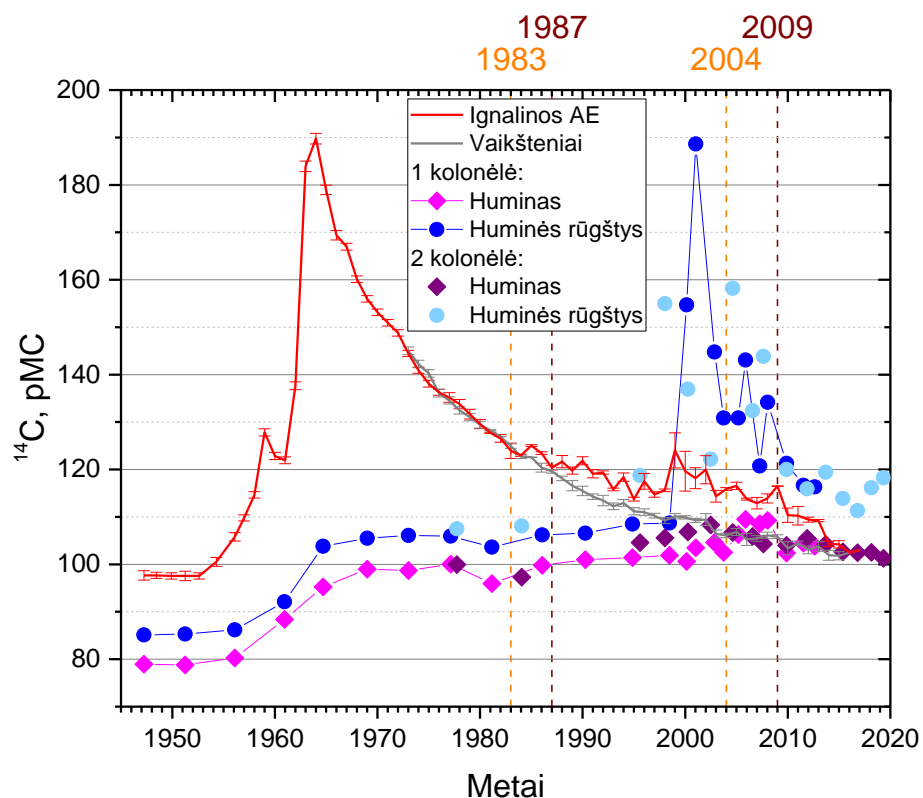
$^{14}\text{C}$  matavimai taip pat buvo atlikti bentosinių bei pelaginių žuvų žvynuose. Kuoja (*Rutilus rutilus*) yra bentosinė žuvis, mintanti įvairiais dugno bestuburiais. Kuojų jauniklių dietos pagrindą sudaro fitoplanktonu mintantis zooplanktonas. Kiek paaugusios, jos pradeda maitintis dugno bestuburiais, vėliau pirmenybę teikia moliuskams. Kadangi radioanglis augant žuviai kaupiasi jos žvynuose, tai reiškia, kad dalis  $^{14}\text{C}$  į kuojas patenka per zooplanktoną, o ne vien tik iš dugno bestuburių. Moliuskai filtruoja vandenį ir minta suspenduota organine medžiaga. Dugno bestuburiai minta nuokritomis. Seliava (*Coregonus albula*) yra pelaginė žuvis, kuri gyvena ežero pagrindinėje vandens masėje, o ne prie dugno. Seliavos minta vien tik zooplanktonu (pastarojo maisto šaltinis – vandens augalai).

Fitoplanktonas, vykdydamas fotosintezę, fiksuoja DIC (ištirpusios neorganinės anglies) pavidalu esančią anglį. Fitoplanktonu minta zooplanktonas bei smulkieji vėžiagyviai, o šiais – mažesnės žuvys, kuriomis minta didesnės plėšriosios žuvys. Mirus įvairiems šios mitybos grandinės organizmams, juos sudariusi anglis vykstant dekompozicijai patenka į dugno nuosėdas. Taip anglis iš atmosferos gali atsidurti dugno nuosėdose. Mitybos grandines, kuriomis anglis patenka į kuojas ir seliavas, atitinkamai galima apibendrinti taip: DIC → vandens augalai → dugno bestuburiai → kuoja; DIC → vandens augalai → zooplanktonas → seliava.

### **3.1 Laikotarpis iki IAE veiklos pradžios ir pirmieji 15 eksploatacijos metų (1945-2000)**

Pirmosios ir antrosios dugno nuosėdų kolonėlių  $^{14}\text{C}$  matavimų rezultatai kartu pateikti 3.2 pav. bei 1 priede. Analizuojant  $^{14}\text{C}$  duomenis iš I-osios kolonėlės nustatyta, kad atmosferiniai branduolinių ginklų bandymai XX a. viduryje sukėlė 20 pMC radioanglies koncentracijos padidėjimą abiejose (HM ir HA) frakcijose [84]. Šių bandymų metu atmosferoje buvo pagaminta apie 220 PBq  $^{14}\text{C}$  [14], o sausumos biosferoje radioanglies koncentracija 1963 m. pasiekė ~190 pMC [16]. Tuo metu į ežerą pateko daugiau nei 0,4 GBq radioanglies. 1950-2000 m. laikotarpiu (t. y. prieš IAE atidarymą ir pirmuosius 15 IAE veikimo metų) radioanglies koncentracija abiejose frakcijose kito vienodai, tik HA frakcijoje ji buvo  $5 \pm 1$  pMC didesnė nei HM. 1984 metais pradėjus Ignalinos AE eksploataciją radioanglies koncentracija abiejose frakcijose padidėjo iki  $4 \pm 1$  pMC.





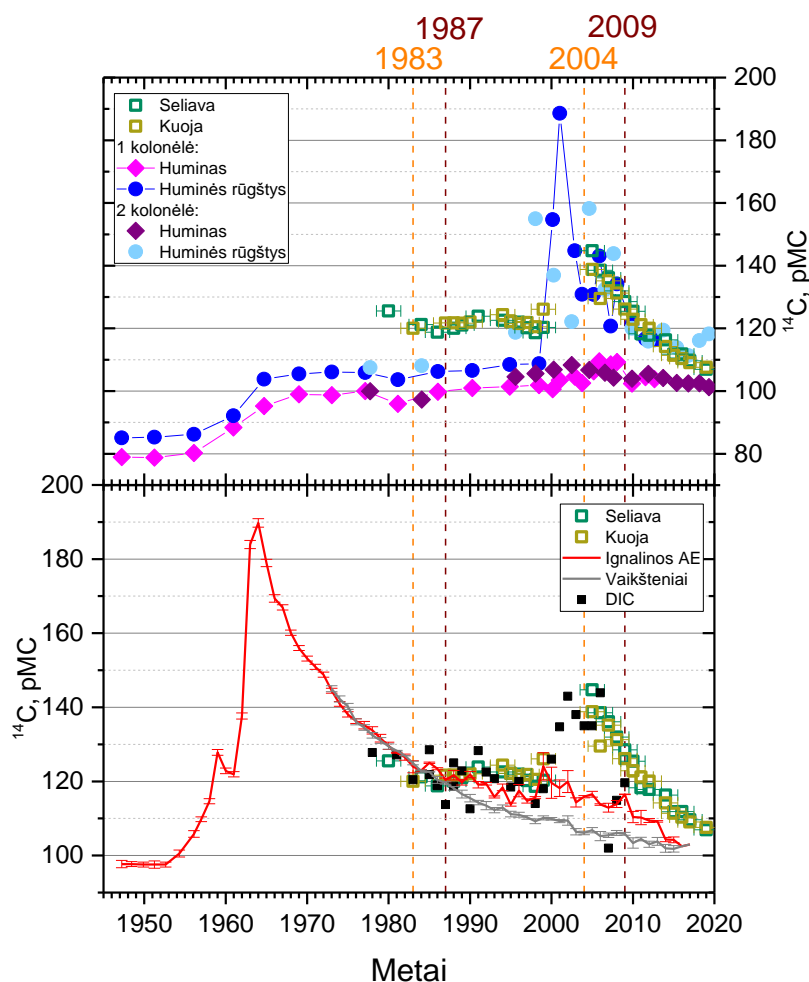
**3.2 pav.** Radioanglies koncentracijos Drūkšių ežero dugno nuosėdų HM ir HA frakcijose bei IAE apylinkėse ir foninėje vietovėje (Vaikšteniuose) augančiose pušyse laikinė priklausomybė (abiejų dugno nuosėdų kolonėlių duomenys).  $^{14}\text{C}$  koncentracijos IAE apylinkėse ir Vaikšteniuose augančiose pušyse duomenys iš Ž. Ežerinskio ir kt. publikacijos [16]

Kaip jau minėta anksčiau, per pirmuosius 15 IAE veikimo metų  $^{14}\text{C}$  tarša ežere buvo DIC formos.  $^{14}\text{C}$  į Drūkšių ežerą galėjo patekti dviem būdais:

- iš atmosferos (Ignalinos atominės elektrinės aplinkoje yra užregistruota padidėjusi radioanglies koncentracija [16], [49]);
- kartu su DIC, kuris galėjo būti išleistas į vandenį iš IAE.

Atskirti šias įtakas nėra įmanoma. 1963 metais dėl branduolinių ginklų testavimo padidėjusi radioanglies koncentracija parodė, kad atmosferos-ežero  $\text{CO}_2$  mainai nulemia apie 22 proc. dugno nuosėdose esančios anglies. Nuo XX a. vidurio, dėl padidėjusio žemės ūkio našumo bei trąšų naudojimo, į vandens telkinius patekdavo daug azoto ir fosforo turinčių junginių, kurie skatindavo vandens telkinių eutrofikaciją bei pakeisdavo  $\text{CO}_2$  mainus tarp vandens ir atmosferos. Drūkšių ežero atveju, prie didėjančios eutrofikacijos prisidėjo ir šiluminė tarša iš Ignalinos atominės elektrinės. Dėl padidėjusios temperatūros ir iš Visagino nuotekų valymo įrenginių į Drūkšių ežerą atitekančių N ir P turinčių junginių visiškai pasikeitė ežero  $\text{CO}_2$  mainai su atmosfera [85]. Dėl to negalima nustatyti, kokia dalis  $^{14}\text{C}$  taršos buvo gauta iš atmosferos, o kokia – kartu su išleistu DIC.

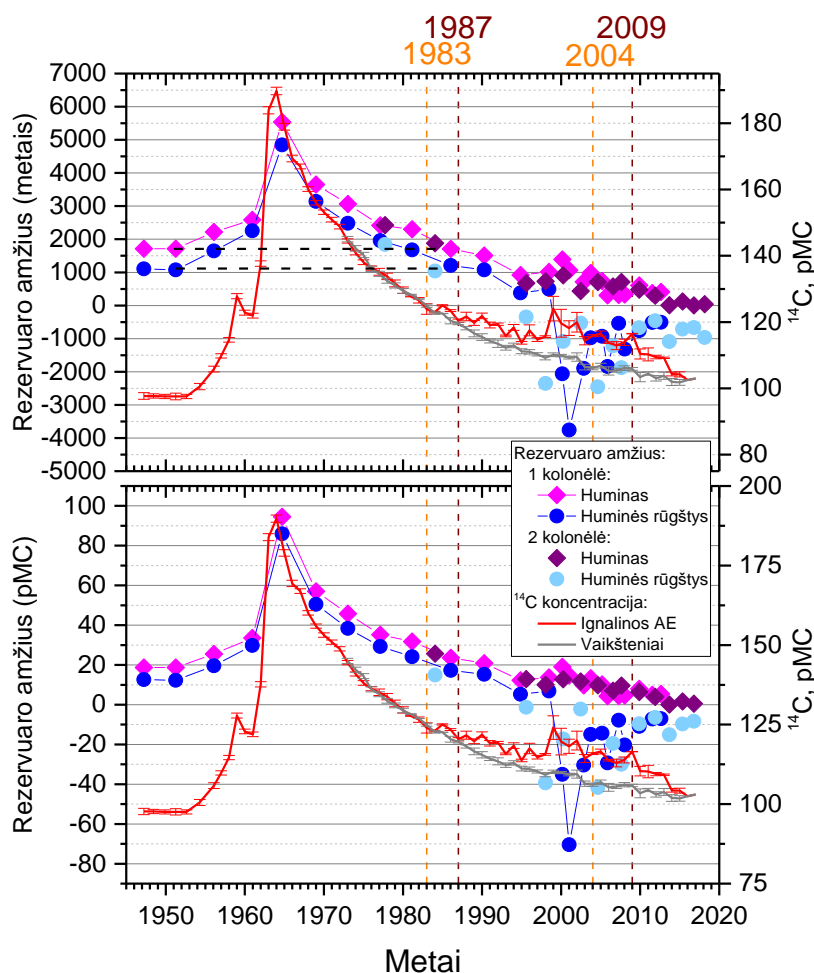
$^{14}\text{C}$  matavimų rezultatai pelaginių ir bentosinių žuvų (seliavų bei kuojų) žvynuose patekti 3.3 pav. bei 2 priede. Tiek tirtos seliavos, tiek kuojos buvo 2-3 metų amžiaus, vadinasi, turime 2-3 metų radioanglies koncentracijos vidurkį tame bandinyje.  $^{14}\text{C}$  koncentracijos kuojų žvynuose puikiai koreliuoja su esančiomis seliavų žvynuose visu tirtu laikotarpiu ( $r = 0,95$ ,  $p < 0,00001$ ). Svarbu paminėti, kad dugno bestuburiai minta dugno bei priedugninėmis nuosėdomis, o pagrindinis organikos šaltinis dugno nuosėdose yra vandens augalai. Todėl nėra neįprasta, kad radioanglies koncentracija kuojoje sutampa su seliavoje užregistruota  $^{14}\text{C}$  koncentracija.



**3.3 pav.** Radioanglies koncentracijos Drūkšių ežero dugno nuosėdų HM ir HA frakcijose, seliavų ir kuojų žvynuose, IAE apylinkėse ir foninėje vietovėje (Vaikšteniuose) augančiose pušyse bei DIC ežero vandenyje laikinė priklausomybė.  $^{14}\text{C}$  koncentracijos IAE apylinkėse ir Vaikšteniuose augančiose pušyse duomenys iš Ž. Ežerinskio ir kt. straipsnio [16], DIC duomenys iš prof. J. Mažeikos publikacijos [30]

Iki 2000 m. pagrindinis anglies patekimo į dugno nuosėdas kelias buvo: DIC → ežero augalai → dugno nuosėdos. C/N santykio matavimai I-osios kolonėlės bendroje organinėje frakcijoje parodė, kad organika dugno nuosėdose yra autochtoninė (vietinės kilmės) [85]. Nustatytos C/N vertės buvo intervale 10-12 [85], tai reiškia, kad terigeninės kilmės organika galėjo sudaryti tik iki 14 proc. dugno nuosėdų organikos (laikoma, kad fitoplanktono C/N santykis yra 6,6, o augalų iš sausumos – 35 [86]–[89]).

Naudojantis abiejų kolonelių  $^{14}\text{C}$  duomenimis buvo apskaičiuotas rezervuaro amžius (RA) abiejose frakcijose (pagal (1.5.2) formulę; laikyta, kad sausumos bandinys buvo IAE apylinkėse augančios pušys, kuriose išmatuotų  $^{14}\text{C}$  koncentracijų vertės buvo publikuotos [16] straipsnyje). Rezervuaro amžiaus (metais bei pMC) kaita Drūkšių ežere pavaizduota 3.4 pav.

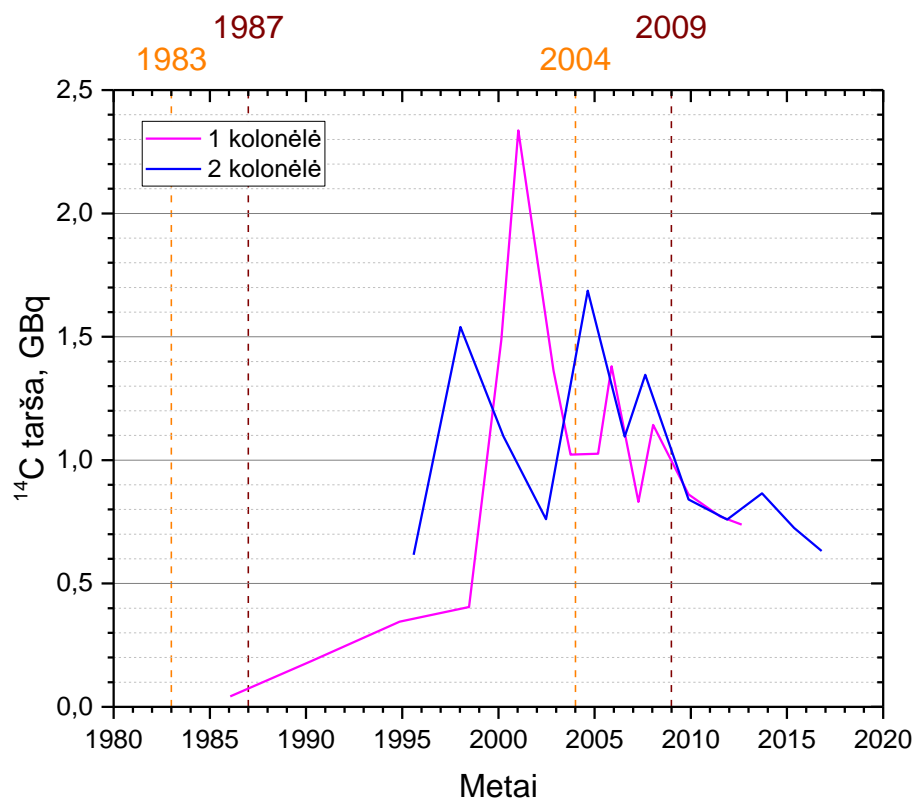


**3.4. pav.** Rezervuaro amžiaus (metais bei pMC) kaita Drūkšių ežero dugno nuosėdų HM ir HA frakcijose bei  $^{14}\text{C}$  koncentracijos IAE apylinkėse ir foninėje vietovėje (Vaikšteniuose) augančiose pušyse laikinė priklausomybė.  $^{14}\text{C}$  koncentracijos IAE apylinkėse ir Vaikšteniuose augančiose pušyse duomenys iš Ž. Ežerinskio ir kt. publikacijos [16]

XX a. penktajame dešimtmetyje (iki branduolinių ginklų bandymų pradžios) rezervuaro amžius pagal humino frakciją buvo  $18,95 \pm 0,99$  pMC ( $1713 \pm 54$  metai), o pagal huminių rūgščių –  $12,41 \pm 0,99$  pMC ( $1092 \pm 54$  metai). Pradėjus atmosferinių atominių ginklų bandymus radioanglies kiekis atmosferoje padidėjo, taip pat padidėjo ir ežero rezervuaro amžius – 1964 m. pasiekė  $94,5$  pMC ( $\sim 5536$  metų) HM frakcijoje ir  $85,9$  pMC ( $\sim 4845$  metų) HA frakcijoje. 1963 m. pasirašius moratoriumą, RA pradėjo mažėti, o maždaug apie 1983 metus RA vertės pasiekė XX a. penktajame dešimtmetyje buvusias vertes – sistema buvo begrižtanti į pradinę padėtį. Pagal tai buvo vertinama, kaip kistų  $^{14}\text{C}$  koncentracija dugno nuosėdose atmetus IAE įtaką (t. y. jeigu iš viso nebūtų Ignalinos AE taršos radioanglimi, įskaitant atmosferinę taršą ir išpylas, bet ir šiluminės taršos bei papildomos taršos azoto ir fosforo junginiais iš Visagino miesto nuotekų valymo įrenginių). IAE poveikis  $^{14}\text{C}$  koncentracijai dugno nuosėdose buvo vertinamas pasinaudojant rezervuaro amžiaus pokyčiais. Rezervuaro amžiaus vertės abiejose dugno nuosėdų frakcijose, atitinkančios laikotarpį iki branduolinių ginklų bandymų (t. y. iki 1960 m.), buvo laikomos atraminėmis. Remiantis jomis, apskaičiuotos radioanglies koncentracijos vertės nuo 1984 m., kurios būtų buvusios, jeigu nebūtų IAE įtakos, t. y. jei RA vertės būtų išlikusios pastovios (šiuo atveju kaip bandinys iš sausumos laikomos foninėje vietovėje (Vaikšteniuose) augančios pušys [16]).  $^{14}\text{C}$  tarša dugno nuosėdose – skirtumas tarp išmatuotųjų ir apskaičiuotųjų radioanglies koncentracijos verčių. Gauti rezultatai pateikti 3.5 pav.

3.5 pav. matoma, kad iki 2000 m. Ignalinos AE  $^{14}\text{C}$  tarša į Drūkšių ežerą buvo pakankamai pastovi – dugno nuosėdose radioanglies koncentracija dėl IAE poveikio vidutiniškai padidėdavo apie 8 pMC per metus (atsižvelgiant į tai, kad anglies koncentracijos dugno nuosėdų HA ir HM frakcijose yra santykiu 4:1). 1995 m. RA pasiekė  $12,3 \pm 0,52$  pMC ( $737 \pm 60$  metus) ir  $5,26 \pm 0,53$  pMC ( $198 \pm 60$  metus), atitinkamai HM ir HA frakcijose. 1998 m. padidėjus radioanglies koncentracijai IAE apylinkėse (aplinkos ore) rezervuaro amžius HM ir HA frakcijose atitinkamai pasiekė  $13,7 \pm 0,82$  pMC ir  $6,89 \pm 1,18$  pMC. Taigi, nuo Ignalinos AE veiklos pradžios iki 2000 m. (per pirmuosius 15 IAE veiklos metų) tarša  $^{14}\text{C}$  dugno nuosėdose tolygiai augo nuo 0,08 iki 0,41 GBq per metus.

Atliekant šiuos skaičiavimus buvo laikoma, kad DIC koncentracija yra pastovi ir yra lygi 2 mM, o ežero vandens buvimo trukmė (angl. *residence time*) – 3 metai.



3.5 pav. Metiniai  $^{14}\text{C}$  išleidimai (DIC pavidalu) iš Ignalinos AE

### 3.2 Laikotarpis nuo 2000 m. iki Ignalinos AE veiklos sustabdymo (2000-2009)

Apie 2001 metus pirmojoje kolonėlėje užregistruotas žymus radioanglies koncentracijos padidėjimas (apie 80 pMC) HA frakcijoje; HM frakcijoje nustatytas tik 2 pMC padidėjimas [84]. II-osios kolonėlės HA frakcijoje matomos dvi radioanglies koncentracijos padidėjimo smailės – 1998 ir 2005 metais ( $^{14}\text{C}$  koncentracija pasiekė  $157 \pm 2$  pMC), vietoje vienos, užregistruotos I-ojoje kolonėlėje 2001 metais. Šiuo atveju reikia atsižvelgti į tai, kad kolonėlės sluoksnio datavimo paklaida gali būti iki 1,5-2 metų, dėl to galima teigti, jog radioanglies koncentracija HA frakcijose abiejose kolonėlėse kinta pagal tą pačią tendenciją. Galima pastebėti, kad šiuo laikotarpiu (1998-2004)  $^{14}\text{C}$  koncentracija antrosios kolonėlės HA frakcijoje yra vidutiniškai 25 pMC mažesnė negu pirmojoje. Neatmetama, kad galėjo įvykti šiuos metus atitinkančių sluoksnių susimaišymas.

Nuo 2001 m. užregistruotas radioanglies padidėjimas DIC; nuo 2005 m. padidėjimas matomas ir žuvų bandiniuose. Šis padidėjimas buvo fiksuojamas ir huminių rūgščių frakcijoje – nuo 2004-2018 metų radioanglies koncentracija žuvyse ir HA frakcijoje sutampa.

Kadangi yra žinoma, kad radioanglies koncentracija seliavose ir DIC yra panaši, galima daryti išvadą, jog  $^{14}\text{C}$  praturtintą DIC fiksavo fitoplanktonas, juo mito zooplanktonas ir kiti smulkūs vėžiagyviai. Per tokias mitybos grandines radioanglis iš IAE galėjo patekti į kuojas ir seliavas.

1998-2008 laikotarpiu abiejų kolonėlių HM frakcijose radioanglies koncentracija buvo padidėjusi 2-7,4 pMC.

Po 2000 metų tiek HA frakcijoje, tiek DIC užregistruotas radioanglies koncentracijos padidėjimas (3.3 pav.). Jeigu apie 2001 m. į ežerą būtų išleistos  $^{14}\text{C}$  praturtintos medžiagos tik DIC pavidalu,  $^{14}\text{C}$  koncentracija HM ir HA frakcijose turėjo pakisti vienodai. Dėl to, galimi du taršos variantai:

1. į ežerą iš IAE galėjo būti papildomai išleista  $^{14}\text{C}$  praturtintų vandenyje tirpių organinių junginių, kurie galėjo kauptis ežero augaluose ir gyvūnuose;
2. į ežerą galėjo būti išleista organinių junginių, kurie nebuvo  $^{14}\text{C}$  šaltiniu, bet darė poveikį humino ir huminių rūgščių tarpusavio sąveikai (žymus  $^{14}\text{C}$  kiekio padidėjimas buvo užregistruotas tik HA frakcijoje).

Pirminis taršos scenarijus yra mažai tikėtinas, nes įprastų Ignalinos atominės elektrinės technologinių procesų metu nesusidaro vandenyje tirpi  $^{14}\text{C}$  praturtinta organika, kuri galėjo būti išleista į Drūkšių ežerą (DOC pavidalu). Kita vertus, yra žinoma, kad organiniai junginiai yra naudojami atominėje energetikoje dezaktyvacijai ar siekiant pašalinti apnašas įvairiuose branduolinio objekto komponentuose. Tad didesnė tikimybė, jog papildomai buvo išleisti organiniai junginiai, kurie nebuvo radioanglies šaltiniu, bet pakeitė dugno nuosėdose vykstančius procesus.

Deja, neturime 2000-2004 metais sugautų žuvų bandinių, tačiau, kaip buvo minėta anksčiau, radioanglies koncentracija 2005-2009 m. žuvų bandiniuose sutapo su  $^{14}\text{C}$  koncentracijomis tiek HA frakcijoje, tiek DIC bandiniuose. Jeigu papildomai būtų išleisti  $^{14}\text{C}$  praturtinti tirpūs organiniai junginiai, radioanglies koncentracija žuvų bandiniuose turėtų būti didesnė, lyginant su koncentracijomis HA bei DIC. Yra žinoma, kad nedidelės masės (iki 1000 Da) organiniai junginiai ar jų metabolitai gali kauptis įvairiuose organizmuose [90].

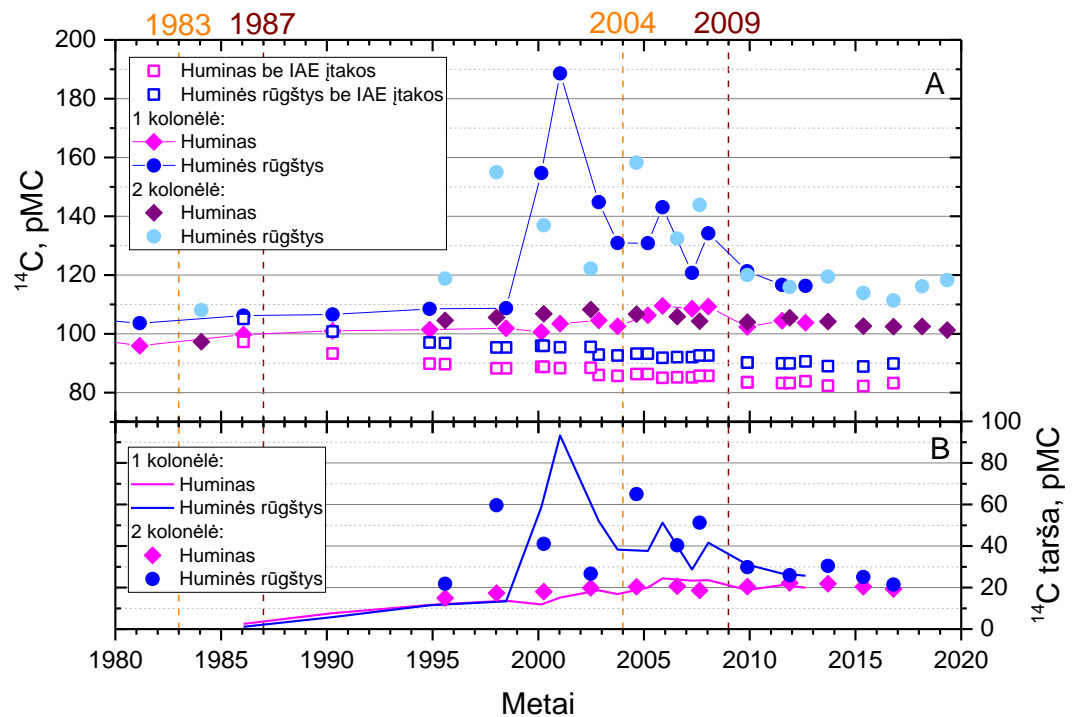
Kaip matome 3.6 pav., apie 2000 metus vykę  $^{14}\text{C}$  praturtintos DIC bei organinių junginių, kurie darė įtaką HM ir HA sąveikai, išleidimai į ežerą radioanglies koncentraciją dugno nuosėdose padidino 77,6 pMC. Rezervuaro amžius HA frakcijoje tapo neigiamu  $-70,45 \pm 2,67$  pMC (-3756  $\pm$  163 metai) – tai reiškia, kad  $^{14}\text{C}$  koncentracija šioje frakcijoje viršijo esančią atmosferoje. Nuo 2001 m.  $^{14}\text{C}$  išleidimai šiek tiek sumažėjo. 2001-2009 m. laikotarpiu radioanglies koncentracija dugno nuosėdose padidėdavo vidutiniškai 37 pMC per metus. Per visą eksploatacijos laikotarpį, IAE sukėlė maždaug 25 proc. radioanglies koncentracijos padidėjimą Drūkšių ežero dugno nuosėdose.

### 3.3 Laikotarpis po Ignalinos AE eksploatacijos nutraukimo (2009-2019)

Nuo 2009 m., sustabdžius Ignalinos atominės elektrinės veiklą, išleidžiamos radioanglies kiekis truputį sumažėjo, tačiau, praėjus dešimtmečiui nuo IAE eksploatacijos sustabdymo,  $^{14}\text{C}$  vertės dugno nuosėdose vis dar yra 21 pMC didesnės negu būtų be Ignalinos AE.

Kaip matome iš apskaičiuotų  $^{14}\text{C}$  metinių išmetimų (GBq per metus) į Drūkšių ežerą (DIC pavidalu), pavaizduotų 3.5 pav., per visą IAE eksploatacijos laikotarpį į ežerą buvo išleista apie 16 GBq radioanglies, tačiau didžiausias išleidimas per metus atitiko 2,3 GBq  $^{14}\text{C}$ . Šis išleidimas neviršijo maksimalios metinės normos – 33 GBq radioanglies, nurodytos Lietuvos aplinkos apsaugos normatyviniame dokumente LAND 42-2007 „Radionuklidų išmetimo į aplinką iš branduolinės energetikos objektų ribojimo ir leidimų išmesti į aplinką radionuklidus išdavimo bei radiologinio monitoringo tvarkos aprašas“ [50].

Apibendrinant Drūkšių ežero būklę  $^{14}\text{C}$  požiūriu galima teigti, kad sistema dar negrįžo į padėtį, buvusią prieš IAE veiklos pradžią. Nuo 2009 metų, sustabdžius IAE eksploataciją, matomas radioanglies kiekio mažėjimas abiejose frakcijose – ežeras po truputį valosi nuo taršos. 3.6 pav. galima pastebėti, jog po 2009 m. sąveika tarp frakcijų atsistato – papildomos  $^{14}\text{C}$  koncentracijos abiejose frakcijose tampa vienodos (kaip buvo prieš 2000 metus). 2019 metais  $^{14}\text{C}$  koncentracija humine pasiekė 101,89 pMC, o huminėse rūgštyse – 117,13 pMC (prieš IAE eksploataciją HM frakcijoje radioanglies buvo 95,93 pMC, o HA – 103,62 pMC). Nuo 2005 m. buvo užregistruotas radioanglies koncentracijos mažėjimas seliavose bei kuojose, o 2019 m. pasiekė maždaug 107 pMC. Verta paminėti, kad IAE apylinkių ore  $^{14}\text{C}$  koncentracija dar nepasiekė atmosferinės (1.6 pav.) [49]. Pagal naujausius turimus duomenis, Drūkšių ežero rezervuaro amžius pagal HM frakciją dabar yra  $0,53 \pm 0,57$  pMC ( $42 \pm 45$  metai), o pagal HA frakciją –  $-8,33 \pm 0,71$  pMC ( $-625 \pm 51$  metai). Dugno nuosėdose  $^{14}\text{C}$  koncentracija yra vis dar didesnė nei atmosferoje, greičiausiai dėl dugno nuosėdų organikos irimo procesų metu į vandens stulpelį grįžtančios  $^{14}\text{C}$ . 2015 metais Ž. Ežerinskio ir kt. vertinta radioanglies koncentracija Ignalinos AE apylinkėse yra keliais pMC didesnė nei foninėje vietovėje [16]. Tai rodo, kad, dėl Ignalinos atominėje elektrinėje vykstančių išmontavimo ir dezaktyvavimo darbų, yra galima tarša radioanglimi. Tad praėjus dešimtmečiui nuo Ignalinos atominės elektrinės veiklos sustabdymo, į ežero dugno nuosėdų viršutinį sluoksnį vis dar „patenka“ apie 0,6 GBq antropogeninės kilmės  $^{14}\text{C}$ .



**3.6 pav.** A – radioanglies koncentracijos Drūkšių ežero dugno nuosėdų HM ir HA frakcijose (be ir su IAE įtaka) laikinė priklausomybė; B –  $^{14}\text{C}$  taršos dugno nuosėdose dėl IAE įtakos laikinė priklausomybė

Ignalinos atominė elektrinė nulėmė ne vien tik taršą radionuklidais. Šiluminė tarša bei Visagino miesto nuotekos pakeitė fotosintezės intensyvumą ežere – iš mezotrofinio ežeras tapo eutrofiniu [91]. Kintant ežero vandens temperatūrai, fotosintezės intensyvumui, kito ir ežero-atmosferos  $\text{CO}_2$  mainai. Šie procesai turėjo įtakos rezervuaro amžiui. Šiuo metu ežeras vis dar valosi nuo taršos  $^{14}\text{C}$ , o valymosi procesų bei ekosistemos atsistatymo metu rezervuaro amžius kinta.



## Pagrindiniai rezultatai ir išvados

1. Prieš XX a. viduryje vykusius branduolinių ginklų bandymus Drūkšių ežero rezervuaro amžius buvo 18,74 pMC ( $1713 \pm 54$  metai) ir 12,40 pMC ( $1092 \pm 54$  metai), atitinkamai pagal humino ir huminių rūgščių frakcijas.
2. Branduolinių ginklų bandymų metu Drūkšių ežero dugno nuosėdose rezervuaro amžius buvo padidėjęs iki  $94,5 \pm 1,17$  pMC ( $5536 \pm 54$  metų, HM) bei  $85,9 \pm 1,18$  pMC ( $4845 \pm 54$  metų, HA), o apie 1984 m. vėl pasiekė pradines vertes. Šie duomenys parodė, kad iki Ignalinos AE atidarymo apie 22 proc. dugno nuosėdose esančios anglies buvo gauta iš atmosferos.
3. Vienoda rezervuaro amžiaus laikinės kaitos eiga abiejose frakcijose parodė, kad per pirmuosius 15 Ignalinos atominės elektrinės eksploatacijos metų į Drūkšių ežerą buvo išleidžiami  $^{14}\text{C}$  praturtinti junginiai ištirpusios neorganinės anglies formoje. Per metus buvo išleidžiama apie 0,24 GBq  $^{14}\text{C}$ .
4. Apie 2000 m. į Drūkšių ežerą iš Ignalinos AE buvo išleista didesnė tarša  $^{14}\text{C}$  (2,3 GBq radioanglies) neorganinės anglies formoje bei papildomi cheminiai junginiai, kurie nebuvo  $^{14}\text{C}$  šaltiniu, bet paveikė humino ir huminių rūgščių tarpusavio sąveiką.
5. Radioanglies koncentracijos matavimai žuvyse patvirtina, kad tarša  $^{14}\text{C}$  buvo ištirpusios neorganinės anglies formoje.
6. Praėjus beveik dešimtmečiui nuo Ignalinos AE eksploatacijos pabaigos, Drūkšių ežeras nuo taršos  $^{14}\text{C}$  (iš IAE) neišsivalė. Dar nepasiekta  $^{14}\text{C}$  mainų pusiausvyra su atmosfera – dugno nuosėdose radioanglies koncentracija yra didesnė nei atmosferoje.

## Literatūros sąrašas

- [1] R. E. Taylor, „Radiocarbon An Dating Archaeological Perspective“, 1987.
- [2] Q. Hua, M. Barbetti, ir A. Z. Rakowski, „Atmospheric Radiocarbon for the Period 1950–2010“, *Radiocarbon*, t. 55, nr. 04, p. 2059–2072, 2013.
- [3] I. Levin ir B. Kromer, „The Tropospheric 14 CO 2 Level in Mid-Latitudes of the Northern Hemisphere (1959–2003)“, *Radiocarbon*, t. 46, nr. 3, p. 1261–1272, 2004.
- [4] M. Stuiver, G. W. Pearson, ir T. Braziunas, „Radiocarbon Age Calibration of Marine Samples Back to 9000 Cal Yr BP“, *Radiocarbon*, 1986.
- [5] M. Stuiver ir T. F. Braziunas, „Modeling Atmospheric 14 C Influences and 14 C Ages of Marine Samples to 10,000 BC“, *Radiocarbon*, t. 35, nr. 1, p. 137–189, 1993.
- [6] R. Barisevičiūtė et al., „Tracing Carbon Isotope Variations in Lake Sediments Caused by Environmental Factors During the Past Century: A Case Study of Lake Tapeliai, Lithuania“, *Radiocarbon*, t. 61, nr. 4, p. 885–903, 2019.
- [7] J. Hou, W. J. D’Andrea, ir Z. Liu, „The influence of 14C reservoir age on interpretation of paleolimnological records from the Tibetan Plateau“, *Quat. Sci. Rev.*, t. 48, p. 67–79, 2012.
- [8] S. Mischke, M. Weynell, C. Zhang, ir U. Wiechert, „Spatial variability of 14C reservoir effects in Tibetan Plateau lakes“, *Quat. Int.*, 2013.
- [9] „Climate change, 1994: radiative forcing of climate change and an evaluation of the IPCC IS92 emission scenarios“, *Choice Rev. Online*, 1996.
- [10] „Ocean biogeochemical dynamics“, *Choice Rev. Online*, t. 44, nr. 04, 2006.
- [11] C. L. Sabine et al., „The Oceanic Sink for Anthropogenic CO<sub>2</sub>“, *Science (80- )*, t. 305, nr. 5682, p. 367–371, 2004.
- [12] E. A. G. Schuur, E. R. M. Druffel, ir S. E. Trumbore, „Radiocarbon and Climate Change“, 2016.
- [13] M. Walker, „Quaternary dating methods“, 2005.
- [14] IAEA, „Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14“, 2004.
- [15] Å. Magnusson, „14C Produced by Nuclear Power Reactors – Generation and Characterization of Gaseous, Liquid and Solid Waste“, Doktoro disertacija, Lund universitetas, Švedija, 2007.
- [16] Ž. Ežerinskis et al., „Annual Variations of 14 C Concentration in the Tree Rings in the Vicinity of Ignalina Nuclear Power Plant“, *Radiocarbon*, t. 60, nr. 4, p. 1227–1236, 2018.
- [17] International Commission on Radiological Protection, „Report of the task group on reference man: anatomical, physiological and metabolic characteristics“, *ICRP Publ.*, 1975.
- [18] Radiacinės saugos centras, „Radiacinės saugos centro 2018 metų veiklos ataskaita“, 2019.
- [19] A. L. Latter ir M. S. Plesset, „Carbon-14 Production from Nuclear Explosions“, *Proceedings*

of the National Academy of Sciences of the United States of America, 1960.

- [20] I. Levin, K. O. Münnich, ir W. Weiss, „The Effect of Anthropogenic CO<sub>2</sub> and <sup>14</sup>C Sources on the Distribution of <sup>14</sup>C in the Atmosphere“, *Radiocarbon*, t. 22, nr. 2, p. 379–391, 1980.
- [21] „Treaty Banning Nuclear Weapon Tests in the Atmosphere, in Outer Space and Under Water. Moscow, August 5, 1963“, *Am. J. Int. Law*, t. 57, nr. 4, p. 1026, 1963.
- [22] H. Oeschger, U. Siegenthaler, U. Schotterer, ir A. Gugelmann, „A box diffusion model to study the carbon dioxide exchange in nature“, *Tellus*, t. 27, nr. 2, p. 168–192, 1975.
- [23] P. P. Tans, A. F. M. De Jong, ir W. G. Mook, „Natural atmospheric <sup>14</sup>C variation and the Suess effect“, *Nature*, t. 280, nr. 5725, p. 826–828, 1979.
- [24] W. F. Libby, „Atmospheric Helium Three and Radiocarbon from Cosmic Radiation“, *Phys. Rev.*, t. 69, nr. 11–12, p. 671–672, 1946.
- [25] G. A. Jones, A. J. T. Jull, T. W. Linick, ir D. J. Donahue, „Radiocarbon Dating of Deep-Sea Sediments: A Comparison of Accelerator Mass Spectrometer and Beta-Decay Methods“, *Radiocarbon*, t. 31, nr. 02, p. 105–116, 1989.
- [26] C. L. Bennett et al., „Radiocarbon Dating with Electrostatic Accelerators: Dating of Milligram Samples“, *Science (80-. )*, t. 201, nr. 4353, p. 345–347, 1978.
- [27] J. Mažeika ir R. Petrošius, „Archeologinių radinių radioanglies amžius“, *Liet. Archeol.*, t. 15, p. 473–483, 1998.
- [28] M. Stuiver ir H. E. Suess, „On the Relationship Between Radiocarbon Dates and True Sample Ages“, *Radiocarbon*, t. 8, nr. 1, p. 534–540, 1966.
- [29] P. J. Reimer et al., „IntCal13 and Marine13 Radiocarbon Age Calibration Curves 0–50,000 Years cal BP“, *Radiocarbon*, t. 55, nr. 04, p. 1869–1887, 2013.
- [30] J. Mažeika, „Carbon-14 in Terrestrial and Aquatic Environment of Ignalina Nuclear Power Plant: Sources of Production, Releases and Dose Estimates“, *Nucl. Power*, 2010.
- [31] K. M. Tierney, „Marine Ecosystem Uptake of Nuclear Reprocessing Derived Radiocarbon (<sup>14</sup>C)“, Doktoro disertacija, Glasgow universitetas, Didžioji Britanija, 2017.
- [32] UNSCEAR, „United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR 2000)“, 2000.
- [33] P. Povinec, M. Chudý, ir A. Šivo, „Anthropogenic Radiocarbon: Past, Present, and Future“, *Radiocarbon*, 1986.
- [34] C. Kunz, „Carbon-14 Discharge At Three Light-Water Reactors“, *Health Phys.*, t. 49, nr. 1, p. 25–35, 1985.
- [35] B. Vokal, I. Kopal, W. Stichler, ir B. Obelic, „Measurements of <sup>14</sup>C in tree-rings around the Krško Nuclear Power Plant“, *Third Regional Meeting: Nuclear Energy in Central Europe, Proceedings*, 1996.

- [36] G. M. Milton, S. J. Kramer, R. M. Brown, C. J. W. Repta, K. J. King, ir R. R. Rao, „Radiocarbon Dispersion around Canadian Nuclear Facilities“, *Radiocarbon*, t. 37, nr. 2, p. 485–496, 1995.
- [37] W. Sohn, D.-W. Kang, ir W.-S. Kim, „An Estimate of Carbon-14 Inventory at Wolsong Nuclear Power Plant in the Republic of Korea“, *J. Nucl. Sci. Technol.*, t. 40, nr. 8, p. 604–613, 2003.
- [38] V. B. Gaiko et al., „Discharge of  $^{14}\text{C}$  by nuclear power stations with RBMK-1000 reactors“, *Sov. At. Energy*, t. 59, nr. 2, p. 703–705, 1985.
- [39] E. A. Konstantinov, N. A. Korablev, E. N. Solov'ev, V. P. Shamov, V. L. Fedorov, ir A. M. Litvinov, „ $^{14}\text{C}$  emission from RBMK-1500 reactors and features determining it“, *Sov. At. Energy*, t. 66, nr. 1, p. 77–79, 1989.
- [40] J. Koarashi, K. Akiyama, T. Asano, ir H. Kobayashi, „Chemical composition of  $^{14}\text{C}$  in airborne release from the Tokai reprocessing plant, Japan“, *Radiat. Prot. Dosimetry*, t. 114, nr. 4, p. 551–555, 2005.
- [41] K. Isogai, G. T. Cook, ir R. Anderson, „Reconstructing the history of  $^{14}\text{C}$  discharges from Sellafield: Part 1-atmospheric discharges“, *J. Environ. Radioact.*, 2002.
- [42] K. M. Tierney et al., „Accumulation of Sellafield-derived radiocarbon ( $^{14}\text{C}$ ) in Irish Sea and West of Scotland intertidal shells and sediments“, *J. Environ. Radioact.*, 2016.
- [43] Z. Wang, D. Hu, H. Xu, ir Q. Guo, „ $^{14}\text{C}$  Distribution in Atmospheric and Aquatic Environments Around Qinshan Nuclear Power Plant, China“, *Radiocarbon*, 2014.
- [44] I. Svetlik et al., „Determination of chemical forms of  $^{14}\text{C}$  in liquid discharges from nuclear power plants“, *J. Environ. Radioact.*, 2017.
- [45] P. Jean-Baptiste et al., „Tritium and radiocarbon levels in the Rhône river delta and along the French Mediterranean coastline“, *J. Environ. Radioact.*, 2018.
- [46] M. Fejgl et al., „A long-term monitoring of  $^{14}\text{C}$  in liquid discharges from NPPs in the Czech Republic“, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 2018.
- [47] „RBMK-1500 reaktoriaus konstrukcija ir ypatumai | Ignalinos atominė elektrinė“. <https://www.iae.lt/apie-imone/techniniai-duomenys/rbmk-1500-reaktoriaus-konstrukcija-ir-ypatumai/70>. [Žiūrėta: 2019-06-10].
- [48] K. Almenas, A. Kaliatka, ir E. Ušpuras, „Ignalina RBMK-1500: A Source Book“, 1998.
- [49] A. Pabedinskas et al., „Assessment of the Contamination by  $^{14}\text{C}$  Airborne Releases in the Vicinity of the Ignalina Nuclear Power Plant“, *Radiocarbon*, t. 61, nr. 5, p. 1185–1197, 2019.
- [50] Lietuvos Respublikos aplinkos ministerija, „LAND 42-2007 Radionuklidų išmetimo į aplinką iš branduolinės energetikos objektų ribojimo ir leidimų išmesti į aplinką radionuklidus išdavimo bei radiologinio monitoringo tvarkos aprašas“, 2007.

- [51] P. L. Ascough et al., „Temporal and Spatial Variations in Freshwater  $^{14}\text{C}$  Reservoir Effects: Lake Mývatn, Northern Iceland“, *Radiocarbon*, t. 52, nr. 3, p. 1098–1112, 2010.
- [52] B. Philippsen, „The freshwater reservoir effect in radiocarbon dating“, *Herit. Sci.*, t. 1, nr. 1, p. 24, 2013.
- [53] R. Fernandes, C. Rinne, M.-J. Nadeau, ir P. Grootes, „Towards the use of radiocarbon as a dietary proxy: Establishing a first wide-ranging radiocarbon reservoir effects baseline for Germany“, *Environ. Archaeol.*, t. 21, nr. 3, p. 285–294, 2016.
- [54] B. Philippsen, „Hard water and old food. The freshwater reservoir effect in radiocarbon dating of food residues on pottery“, *Doc. Praehist.*, t. 42, 2015.
- [55] S. Nardi, D. Pizzeghello, A. Muscolo, ir A. Vianello, „Physiological effects of humic substances on higher plants“, *Soil Biol. Biochem.*, t. 34, nr. 11, p. 1527–1536, 2002.
- [56] R. Ashauer, A. Hintermeister, I. O’Connor, M. Elumelu, J. Hollender, ir B. I. Escher, „Significance of Xenobiotic Metabolism for Bioaccumulation Kinetics of Organic Chemicals in *Gammarus pulex*“, *Environ. Sci. Technol.*, t. 46, nr. 6, p. 3498–3508, 2012.
- [57] P. A. del Giorgio ir R. H. Peters, „Patterns in planktonic P:R ratios in lakes: Influence of lake trophity and dissolved organic carbon“, *Limnol. Oceanogr.*, t. 39, nr. 4, p. 772–787, 1994.
- [58] Y. T. Prairie, D. F. Bird, ir J. J. Cole, „The summer metabolic balance in the epilimnion of southeastern Quebec lakes“, *Limnol. Oceanogr.*, t. 47, nr. 1, p. 316–321, 2002.
- [59] M. B. Abbott ir T. W. Stafford, „Radiocarbon Geochemistry of Modern and Ancient Arctic Lake Systems, Baffin Island, Canada“, *Quat. Res.*, t. 45, nr. 03, p. 300–311, 1996.
- [60] G. R. Aiken, D. M. McKnight, R. L. Wershaw, ir P. McCarthy, „Humic Substances in Soil, Sediment, and Water: Geochemistry, Isolation, and Characterization“, 1985.
- [61] M. Kleber ir J. Lehmann, „Humic Substances Extracted by Alkali Are Invalid Proxies for the Dynamics and Functions of Organic Matter in Terrestrial and Aquatic Ecosystems“, *J. Environ. Qual.*, 2019.
- [62] J. Lehmann ir M. Kleber, „The contentious nature of soil organic matter“, *Nature*, t. 528, nr. 7580, p. 60–68, 2015.
- [63] J. Schellekens et al., „Molecular Features of Humic Acids and Fulvic Acids from Contrasting Environments“, *Environ. Sci. Technol.*, t. 51, nr. 3, p. 1330–1339, 2017.
- [64] H. Kerndorff ir M. Schnitzer, „Sorption of metals on humic acid“, *Geochim. Cosmochim. Acta*, t. 44, nr. 11, p. 1701–1708, 1980.
- [65] Pöyry Energy Oy ir Lietuvos energetikos institutas, „Poveikio aplinkai vertinimo ataskaita Nauja atominė elektrinė Lietuvoje“, 2008.
- [66] Valstybės įmonės Ignalinos atominės elektrinės Eksploatacijos nutraukimo direkcija, „Poveikio aplinkai vertinimo ataskaita“, 2011.

- [67] R. Janukėnienė ir V. Jakubauskas, „Hydrothermal regime under the thermal effect of the INPP“, *Acad. Publ.*, p. 53–69, 1992.
- [68] Ignalinos atominės elektrinės Eksploatacijos nutraukimo departamentas, „Poveikio aplinkai vertinimo ataskaita“, 2019.
- [69] P. Meire, M. Coenen, C. Lombardo, M. Robba, ir R. Sacile, Sud., „Integrated Water Management“, t. 80, Dordrecht: Springer Netherlands, 2008.
- [70] F. Brock, T. Higham, P. Ditchfield, ir C. B. Ramsey, „Current Pretreatment Methods for AMS Radiocarbon Dating at the Oxford Radiocarbon Accelerator Unit (Orau)“, *Radiocarbon*, t. 52, nr. 01, p. 103–112, 2010.
- [71] M. E. Perga ir D. Gerdeaux, „Using the delta13C and delta15N of whitefish scales for retrospective ecological studies: changes in isotope signatures during the restoration of Lake Geneva, 1980-2001“, *J. Fish Biol.*, t. 63, nr. 5, p. 1197–1207, 2003.
- [72] L. Wacker, M. Němec, ir J. Bourquin, „A revolutionary graphitisation system: Fully automated, compact and simple“, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, t. 268, nr. 7–8, p. 931–934, 2010.
- [73] M. Němec, L. Wacker, ir H. Gäggeler, „Optimization of the Graphitization Process at Age-1“, *Radiocarbon*, t. 52, nr. 03, p. 1380–1393, 2010.
- [74] L. K. Fifield, „Accelerator mass spectrometry and its applications“, *Reports Prog. Phys.*, t. 62, nr. 8, p. 1223–1274, 1999.
- [75] R. D. Cowan, C. F. Fischer, J. E. Hansen, ir V. Kempter, „Excited states of the negative nitrogen ion: energies and lifetimes“, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, t. 30, nr. 6, p. 1457–1466, 1997.
- [76] R. P. Shanks ir S. P. H. T. Freeman, „160 keV 26Al-AMS with a single-stage accelerator mass spectrometer“, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, t. 361, p. 307–310, 2015.
- [77] National Electrostatics Corporation, „Single Stage Accelerator Mass Spectrometry (SSAMS)“. <http://www.pelletron.com/wp-content/uploads/2017/05/SSAMS.pdf>. [Žiūrėta: 2020-04-22].
- [78] National Electrostatics Corporation, „Multi-Cathode Gas Source of Negative Ions by Cesium Sputtering “MCGSNICS” Ion Source“. Instruction Manual, 2014.
- [79] National Electrostatics Corporation, „Multi - Cathode Source of Negative Ions by Cesium Sputtering (MC - SNICS)“. <https://www.pelletron.com/wp-content/uploads/2017/02/MC-SNICS-v1.pdf>. [Žiūrėta: 2020-04-22].
- [80] K. E. Stenström, G. Skog, E. Georgiadou, J. Genberg, ir A. Johansson, „A guide to radiocarbon units and calculations“, *Lunfd*, t. 6, nr. October, p. 0–17, 2011.
- [81] K. Rozanski et al., „The IAEA 14 C Intercomparison Exercise 1990“, *Radiocarbon*, t. 34, nr.

- 3, p. 506–519, 1992.
- [82] M. Le Clercq, J. Van Der Plicht, ir M. Gröning, „New 14 C Reference Materials with Activities of 15 and 50 pMC“, *Radiocarbon*, t. 40, nr. 1, p. 295–297, 1997.
- [83] A. G. Hogg et al., „Radiocarbon age assessment of a new, near background IAEA 14C quality assurance material“, *Radiocarbon*, 1995.
- [84] L. Butkus, „Radioanglies koncentracijos kaita Drūkšių ežero dugno nuosėdose“, Mokslo tiriamasis darbas, Vilniaus Universitetas, 2019.
- [85] L. Butkus, „Stabiliųjų anglies izotopų santykio kaita Drūkšių ežere“, Mokslinės tiriamosios praktikos ataskaita, Vilniaus Universitetas, 2020.
- [86] J. E. Cloern, E. A. Canuel, ir D. Harris, „Stable carbon and nitrogen isotope composition of aquatic and terrestrial plants of the San Francisco Bay estuarine system“, *Limnol. Oceanogr.*, t. 47, nr. 3, p. 713–729, 2002.
- [87] M. J. Leng ir J. D. Marshall, „Palaeoclimate interpretation of stable isotope data from lake sediment archives“, *Quaternary Science Reviews*, 2004.
- [88] A. L. Lamb, M. J. Leng, M. U. Mohammed, ir H. F. Lamb, „Holocene climate and vegetation change in the Main Ethiopian Rift Valley, inferred from the composition (C/N and  $\delta^{13}\text{C}$ ) of lacustrine organic matter“, *Quaternary Science Reviews*, 2004.
- [89] S. Contreras, J. P. Werne, A. Araneda, R. Urrutia, ir C. A. Conejero, „Organic matter geochemical signatures (TOC, TN, C/N ratio,  $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{15}\text{N}$ ) of surface sediment from lakes distributed along a climatological gradient on the western side of the southern Andes“, *Sci. Total Environ.*, t. 630, p. 878–888, 2018.
- [90] C. E. W. Steinberg, A. Paul, S. Pflugmacher, T. Meinelt, R. Klöcking, ir C. Wiegand, „Pure humic substances have the potential to act as xenobiotic chemicals - A review“, *Fresenius Environmental Bulletin*. 2003.
- [91] D. Marčiulionienė, D. Montvydienė, N. Kazlauskienė, ir V. Kesminas, „Changes in macrophytes and fish communities in the cooler of Ignalina nuclear power plant (1988–2008)“, *J. Environ. Eng. Landsc. Manag.*, t. 19, nr. 1, p. 21–33, 2011.

**Antropogeninių veiksnių sukeltos rezervuaro amžiaus kaitos Drūkšių ežere tyrimas**

**Santrauka**

Radioanglis ( $^{14}\text{C}$ ) yra ilgaamžis radionuklidas, kurio pusėjimo trukmė yra  $5730 \pm 40$  metų. Yra žinoma, kad  $^{14}\text{C}$  izotopas gali būti ne tik natūralios kilmės, susidarantis kosminiams spinduliams sąveikaujant su Žemės atmosfera, bet ir antropogeninės – susidarantis branduolinių reakcijų metu branduoliniuose objektuose. Dėl plataus anglies paplitimo ekosistemose,  $^{14}\text{C}$  galima panaudoti kaip antropogeninės veiklos žymenį teršalų sklaidos, kaupimosi ir dinaminių procesų ekosistemose tyrimams.

Rezervuaro efektą galima apibrėžti kaip radioanglies koncentracijos skirtumą tarp vandens ekosistemos objektų bei atmosferos. Rezervuaro efektas išreiškiamas rezervuaro amžiumi, kuris gali kisti dėl įvairių pokyčių vandens ekosistemos anglies cikle. Dėl šios priežasties, rezervuaro efekto tyrimai gali padėti įvertinti išorinių faktorių poveikio hidrologinėi sistemai mastus.

Šiame darbe buvo siekiama įvertinti branduolinio objekto (Ignalinos atominės elektrinės, Ignalinos AE) taršą radioanglimi Drūkšių ežero ekosistemoje. Iš Drūkšių ežero buvo paimtos dvi dugno nuosėdų kolonėlės. Šiems dugno nuosėdų mėginiams atlikta ABA cheminio paruošimo procedūra, išskirtos humino (HM) bei huminių rūgščių (HA) frakcijos ir išmatuotos  $^{14}\text{C}$  koncentracijos jose. Taip pat radioanglies koncentracijos buvo išmatuotos skirtingų metų Drūkšių ežero seliavų bei kuojų žvynuose.

1963 metais dėl branduolinių ginklų testavimo padidėjusi radioanglies koncentracija parodė, kad atmosferos-ežero  $\text{CO}_2$  mainai sudaro apie 22 proc. dugno nuosėdose esančios anglies. Tyrimo metu nustatyta, kad per pirmuosius 15 Ignalinos atominės elektrinės eksploatacijos metų į Drūkšių ežerą buvo išleidžiama  $^{14}\text{C}$  praturtinta ištirpusi neorganinė anglis (DIC). Tuo laikotarpiu vidutiniškai per metus buvo išleidžiama apie 0,24 GBq radioanglies. Radioanglies koncentracijos matavimai žuvyse patvirtina, kad tarša  $^{14}\text{C}$  buvo ištirpusi neorganinė anglis.

Apie 2000 m. į Drūkšių ežerą iš Ignalinos AE buvo išleistas  $^{14}\text{C}$  praturtintas DIC (2,3 GBq radioanglies). Taip pat tais pačiais metais papildomai galimai buvo išleisti organiniai junginiai, kurie nebuvo  $^{14}\text{C}$  šaltiniu, bet paveikė humino ir huminių rūgščių tarpusavio sąveiką. Tyrimo metu nustatyta, kad praėjus beveik dešimtmečiui nuo Ignalinos AE eksploatacijos pabaigos, Drūkšių ežeras nuo taršos  $^{14}\text{C}$  (iš IAE) dar valosi. Ežere dar nepasiekta  $^{14}\text{C}$  mainų pusiausvyra su atmosfera – dugno nuosėdose radioanglies koncentracija yra didesnė nei atmosferoje.



**Tracing the Reservoir Age Variations in Lake Drūkšiai Caused by Environmental Factors**

**Summary**

Radiocarbon ( $^{14}\text{C}$ ) is a long-lived carbon isotope that has a half-life of  $5730 \pm 40$  years. Nuclear power plants are one of the main producers of anthropogenic  $^{14}\text{C}$ . Anthropogenic radiocarbon can be released into the environment in gaseous forms, with liquid releases or with spent nuclear fuel. Despite this pollution is not significant in the sense of population exposure doses, but it is a significant  $^{14}\text{C}$  increase above background effect that allows the use it as an anthropogenic contamination tracer to study the dissemination, accumulation, and dynamics redistribution processes of the pollutant in ecosystem.

The reservoir effect (RE) is defined as the difference between the radiocarbon isotope ratio ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ) in the terrestrial and aquatic systems. Both natural processes and anthropogenic activities affecting carbon cycling in the water ecosystem can lead to changes in the RE. Therefore, reservoir effect studies can help to assess the impact of external factors on a hydrological system.

The aim of this research was to evaluate the impact of anthropogenic  $^{14}\text{C}$  contamination from Ignalina nuclear power plant (Ignalina NPP, INPP) on the Lake Drūkšiai system. The lake sediment and fish (both benthic and pelagic) scale samples were collected from the Drūkšiai lake. ABA (acid-base-acid) chemical pretreatment procedure was used to extract humin (HM) and humic acid (HA) fractions from the sediments. Radiocarbon measurements in these samples were performed using the accelerator mass spectrometer.

In 1963, increased concentrations of radiocarbon due to testing of nuclear weapons showed that  $\text{CO}_2$  exchange accounted for about 22% carbon in bottom sediments. During the first 15 years of operation of the Ignalina Nuclear Power Plant,  $^{14}\text{C}$ -enriched dissolved inorganic carbon (DIC) was continuously released into Lake Druksiai. During that period, an average of about 0.24 GBq of radiocarbon was released per year. Measurements of radiocarbon concentrations in fish confirm that the  $^{14}\text{C}$  contamination was in dissolved inorganic carbon form.

Around 2000,  $^{14}\text{C}$ -enriched DIC (2.3 GBq radiocarbon) was released into Lake Druksiai from Ignalina NPP. In addition, organic compounds that were not a source of  $^{14}\text{C}$  but affected the interaction between humic and humic acids were additionally released in the same year. Almost a decade after the end of operation of the Ignalina NPP, there is still some  $^{14}\text{C}$  pollution (from INPP) remaining in Lake Druksiai. - the concentration of radiocarbon in the bottom sediments is still higher than in the atmosphere.

## **Padėka**

Dėkoju Fizinių ir technologijos mokslų centro Branduolinių tyrimų skyriaus vadovui prof. habil. dr. Vidmantui Remeikiui už galimybę atlikti magistro studijų baigiamąjį darbą centre. Nuoširdžiai dėkoju darbo vadovei dr. Rūtai Barisevičiūtei už idėjas, vertingus patarimus bei pastabas. Už pagalbą atliekant bandinių paruošimą matavimams bei įdomias ir naudingas diskusijas esu labai dėkingas dr. Justinai Šapolaitei ir dokt. Algirdui Pabedinskiui. Taip pat dėkoju dr. Žilvinui Ežerinskiui už konsultacijas ir pagalbą atliekant matavimus greitintuvo masių spektrometru. Dėkoju dr. Evaldui Maceikai už įžvalgas ir vertingas pastabas.

Ačiū visiems, kurie tiesiogiai ar netiesiogiai padėjo rašant šį darbą.

## Priedai

### 1 priedas

Lentelė. Drūkšių ežero dugno nuosėdų kolonėlių sluoksnių  $^{14}\text{C}$  koncentracijos tyrimo rezultatai skirtingose organinėse frakcijose (humine ir huminėse rūgštyse)

Metai	1 kolonėlė				Metai	2 kolonėlė			
	Huminas (HM)		Huminės rūgštys (HA)			Huminas (HM)		Huminės rūgštys (HA)	
	$^{14}\text{C}$ , pMC	Paklaida $1\sigma$	$^{14}\text{C}$ , pMC	Paklaida $1\sigma$		$^{14}\text{C}$ , pMC	Paklaida $1\sigma$	$^{14}\text{C}$ , pMC	Paklaida $1\sigma$
2013	103,82	0,04	116,31	0,05	2019	101,27	0,53	118,24	0,75
2012	104,47	0,04	116,67	0,05	2018	102,52	0,60	116,14	0,74
2010	102,37	0,04	121,3	0,05	2017	102,47	0,57	111,34	0,71
2008	109,27	0,05	134,19	0,06	2015	102,63	0,68	113,89	0,73
2007	108,55	0,83	120,72	1	2014	104,20	0,59	119,43	0,76
2006	109,5	0,88	143,08	1	2012	105,47	0,60	115,91	0,74
2005	106,29	0,81	130,85	1	2010	103,99	0,56	120,02	0,77
2004	102,54	0,82	130,87	1	2008	104,28	0,61	143,85	0,92
2003	104,61	0,8	144,78	1,13	2007	105,88	0,60	132,39	0,84
2001	103,47	0,77	188,62	1,48	2005	106,72	0,62	158,20	1,01
2000	100,61	0,78	154,69	1,29	2002	108,29	0,62	122,16	0,78
1998	101,91	0,78	108,73	1,15	2000	106,83	0,61	136,94	0,87
1995	101,43	0,32	108,48	0,34	1998	105,58	0,60	154,95	0,99
1990	100,98	0,32	106,58	0,34	1996	104,59	0,59	118,75	0,76
1986	99,79	0,31	106,22	0,34	1984	97,31	0,56	108,07	0,69
1981	95,93	0,3	103,62	0,33	1978	99,96	0,57	107,51	0,69
1977	100,01	0,32	105,94	0,33					
1973	98,69	0,31	106,1	0,33					
1969	99	0,31	105,51	0,33					
1965	95,26	0,3	103,81	0,33					
1961	88,39	0,04	92,11	0,04					
1956	80,28	0,03	86,2	0,04					
1951	78,8	0,03	85,31	0,04					
1947	78,94	0,03	85,11	0,04					

## 2 priedas

Lentelė.  $^{14}\text{C}$  matavimo rezultatai Drūkšių ežero žuvų žvynuose

Metai	Seliavos		Metai	Kuojos	
	$^{14}\text{C}$ , pMC	Paklaida $1\sigma$		$^{14}\text{C}$ , pMC	Paklaida $1\sigma$
2019	106,96	0,67	2019	107,60	0,73
2017	109,66	0,4	2017	109,04	0,74
2016	111,85	0,4	2016	110,35	0,71
2015	111,8	0,4	2015	111,39	0,75
2014	116,31	0,23	2014	114,20	0,77
2012	117,82	0,23	2012	120,05	0,81
2011	118,29	0,23	2011	121,17	0,82
2010	125,46	0,69	2010	122,88	0,83
2009	128,52	0,71	2009	126,15	0,85
2008	131,98	0,73	2008	131,27	0,89
2007	136,11	0,75	2007	135,17	0,91
2006	138,53	0,27	2006	129,53	0,88
2005	144,74	0,28	2005	138,78	0,79
1999	120,32	0,66	1999	126,08	0,75
1998	118,63	0,65	1998	120,53	0,82
1997	120,21	0,24	1997	121,86	0,82
1996	121,95	0,24	1996	121,54	0,82
1995	122,16	0,24	1995	122,20	0,83
1994	122,55	0,68	1994	124,36	0,84
1991	123,9	0,24	1990	122,05	0,83
1989	121,05	0,24	1989	121,64	0,82
1988	120,05	0,24	1988	121,74	0,82
1986	118,8	0,65	1987	121,69	0,82
1984	121,2	0,24	1983	120,02	0,78
1980	125,55	0,25			