

VILNIAUS UNIVERSITETAS
FIZINIŲ IR TECHNOLOGIJOS MOKSLŲ CENTRAS

Algirdas Pabedinskas

Radioanglies sklaidos atmosferoje ir kaupimosi biosferoje tyrimas branduolinio objekto aplinkoje

DAKTARO DISERTACIJA

Gamtos mokslai,
Fizika (N 002)

VILNIUS 2022

Disertacija rengta 2017–2021 metais VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centre.

Mokslinis vadovas – prof. dr. Vidmantas Remeikis (VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centras, gamtos mokslai, fizika, N 002).

Mokslinis konsultantas – dr. Evaldas Maceika (VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centras, gamtos mokslai, fizika, N 002).

Gynimo taryba:

Pirmininkas – prof. dr. Gintaras Valušis (VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centras, gamtos mokslai, fizika, N 002).

Nariai:

Prof. habil. dr. Vytautas Balevičius (Vilniaus universitetas, gamtos mokslai, fizika, N 002),

Dr. Galina Lujanienė (VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centras, gamtos mokslai, chemija, N 003),

Dr. Ernestas Narkūnas (Lietuvos energetikos institutas, gamtos mokslai, fizika, N 002),

Habil. dr. Danas Ridikas (Tarptautinė atominės energetikos agentūra, Austrija, gamtos mokslai, fizika, N 002).

Disertacija ginama viešame Gynimo tarybos posėdyje 2022 m. lapkričio mėn. 30 d. 13 val. VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centre, A101 konferencijų salėje.

Adresas: Saulėtekio al. 3, Vilnius, Lietuva.

Tel. +370 5 264 9211; el. paštas office@ftmc.lt

Disertaciją galima peržiūrėti Fizinių ir technologijos mokslų centro ir Vilniaus universiteto bibliotekose ir VU interneto svetainėje adresu:

<https://www.vu.lt/naujienos/ivykiu-kalendorius>

VILNIUS UNIVERSITY
CENTER FOR PHYSICAL SCIENCES AND TECHNOLOGY

Algirdas Pabedinskas

Radiocarbon dispersion in the atmosphere and accumulation in the biosphere analysis in the environment of a nuclear facility

DOCTORAL DISSERTATION

Natural sciences,
Physics (N 002)

VILNIUS 2022

The dissertation was prepared in 2017 – 2021 at the SRI Center for physical sciences and Technology.

Academic supervisor – Prof. Dr. Vidmantas Remeikis (VMTI Center for Physical Sciences and Technology, Natural Sciences, Physics, N 002).

Academic consultant – Dr. Evaldas Maceika (VMTI Center for Physical Sciences and Technology, natural sciences, physics, N 002).

This doctoral dissertation will be defended in a public/closed meeting of the Dissertation Defense Panel:

Chairman – Prof. Dr. Gintaras Valušis (VMTI Center for Physical Sciences and Technology, Natural Sciences, Physics, N 002).

Members:

Prof. Habil. Dr. Vytautas Balevičius (Vilnius University, Natural Sciences, Physics, N 002),

Dr. Galina Lujanienė (VMTI Center for Physical Sciences and Technology, Natural Sciences, Chemistry, N 003),

Dr. Ernestas Narkūnas (Lithuanian Energy Institute, Natural Sciences, Physics, N 002),

Habil. Dr. Danas Ridikas (International Atomic Energy Agency, Austria, Natural Sciences, Physics, N 002).

The dissertation shall be defended at a public/closed meeting of the Dissertation Defense Panel at 13.00 on 30th November, 2022, at A101 conference room of the Center for Physical Sciences and Technology. Address: Saulėtekio ave. 3, Vilnius, Lithuania.

Tel. +370 5 264 9211; e-mail: office@ftmc.lt

The text of this dissertation can be accessed at the libraries of Center for Physical Sciences and Technology and Vilnius University, as well as on the website of Vilnius University: www.vu.lt/lt/naujienos/ivykiu-kalendorius

TURINYS

IVADAS.....	7
1. LITERATŪROS APŽVALGA.....	11
1.1. Radioanglis	11
1.2. Anglies ciklas.....	13
1.3. Antropogeniniai radioanglies šaltiniai	15
1.4. ^{14}C tyrimai Lietuvoje	19
1.5. Radioanglis biotoje – aplinkos užterštumo indikatorius	24
1.6. Radioanglis medžių rievėse	25
1.7. Medienos bandinio paėmimas ir rievių skaičiavimas	27
1.8. Radioanglis vandens telkinių nuosėdose.....	29
1.9. Ežero dugno nuosėdų formavimasis	30
1.10. Vandens telkinio sedimentų bandinio paėmimas	32
1.11. Sedimentų radiometriniai matavimai	34
1.12. Cheminis medienos ėminių paruošimas ^{14}C matavimams	35
1.13. Cheminis ežero dugno nuosėdų ėminių paruošimas ^{14}C matavimams	36
1.14. Grafitizavimo sistema AGE3.....	38
1.15. ^{14}C izotopo masių spektrometrija.....	39
1.16. Modernios anglies įvertinimas	43
1.17. Dujų sklaidos modeliavimas	45
2. TYRIMO OBJEKTAS IR METODIKA.....	49
2.1. Medienos bandiniai ir jų paruošimas	49
2.2. Medienos struktūros analizė	52
2.3. Cheminis celiuliozės išskyrimas	54
2.4. Nuosėdų bandinių paruošimas	55
2.5. Grafitizavimo procedūra	56
2.6. AMS analizės procedūra	60
2.7. Duomenų apdorojimas <i>abc</i> programa	62
2.8. Gauso dujų sklaidos modeliavimas.....	63
3. REZULTATAI.....	69
3.1. Foninio lygmens nustatymas medžių rievėse.....	69
3.2. ^{14}C pokytis metinėse medžių rievėse iš Ignalinos AE teritorijos ..	69
3.3. Salaspilio mokslinio branduolinio reaktoriaus poveikio vertinimas.....	74
3.4. ^{14}C pernašos atmosferoje modeliavimas	75
3.5. Ignalinos atominės elektrinės ^{14}C taršos oro keliu vertinimas	78
3.6. ^{14}C savitasis aktyvumas ežero dugno nuosėdose	85
3.7. Galimos efektinės dozės vietiniams gyventojams vertinimas.....	87

4. IŠVADOS	90
5. LITERATŪROS SĄRAŠAS.....	92
6. SUMMARY	106
6.1. Introduction.....	106
6.2. Materials and methods.....	109
6.3. Radiocarbon	109
6.4. Anthropogenic radiocarbon sources	110
6.5. Bioindicators	111
6.6. Lake sediments	112
6.7. Sample collection and chemical preparation	113
6.8. Radiometric measurements	114
6.9. Distributions modeling.....	115
6.10. Sampling sites	116
6.11. Results.....	118
6.12. Radiocarbon in the vicinity of Ignalina NPP	119
6.13. Atmospheric modeling of local ^{14}C distribution	122
6.14. Air pollution by ^{14}C assessment from Ignalina nuclear power plant.....	124
6.15. ^{14}C specific activity in lake sediments	129
6.16. Possible effective radiation dose assessment for local residents	131
6.17. Conclusions.....	133
7. PADĖKA.....	136
8. PUBLIKACIJŲ IR KONFERENCIJŲ SĄRAŠAS	137
8.1. Mokslinės publikacijos	137
8.2. Mokslinės konferencijos ir mokymai.....	137
9. GYVENIMO APRAŠYMAS.....	140
10.ABOUT THE AUTHOR.....	140

IVADAS

Technologinė žmonijos pažanga ir intensyvi pramonės, žemės ūkio, transporto ir kitų gamybos sričių plėtra neatsiejama nuo augančių energijos poreikių. Kita vertus energetikos pramonė neišvengiamai kuria problemas, susijusias su poveikiu aplinkai ir žmogui nepageidautiniais veiksniais. Senka gamtinės iškastinio kuro atsargos, atmosferoje ir kituose aplinkos sanduose kaupiasi žalingi aplinkai ir žmogui degimo produktai. Pastaraisiais metais dėl besikaupiančių „šiltnamio efektą“ sukeliančių dujų (anglies dvideginis, sieros ir azoto oksidai ir t.t.) neabejotinai stebimi klimato atšilimo žalingi padariniai. Šios aplinkybės anksčiau ar vėliau privers atsigręžti į branduolinę energetiką, kurios pagrindinis privalumas – švari elektros energijos gamyba, mažos kuro sąnaudos (1 branduolinio kuro tabletė atitinka 1 t anglies energijos požiūriu) be to branduolinės elektrinės reikalauja nedidelės teritorijos lyginant su vėjo ar saulės jėgainių parkais.

Tačiau net pažangiausios branduolinės technologijos reikalauja įvertinti eksploatacijos ir avarinių situacijų keliamas rizikas, todėl būtina vadovautis naujausiais moksliniais pasiekimais branduolinės inžinerijos, branduolinės ir radiacinės saugos srityse ir tik giliai suprasdami visumą procesų, vykstančių reaktoriuose ne tik normalios eksploatacijos metu, bet ir sugebėdami įvertinti galimų avarijų scenarijus, tikimybes ir pasekmes bei numatydami priemones kaip tokių įvykių išvengti, galime turėti tausojančią aplinką ir saugų žmogui ilgalaikį energijos šaltinį.

Ypač aktualiais ir perspektyviais tampa moksliniai tyrimai sprendžiantys radiacinės saugos, radioaktyviųjų atliekų charakterizavimo, tvarkymo bei saugojimo technologinius uždavinius. Naujos mokslinės žinios apie radionuklidus susikaupusius eksploatacinėse atliekose, elektrinės konstrukcijose ir įrengimuose leis sukurti saugias branduolinių įrenginių išmontavimo schemas ir radioaktyviųjų atliekų sutvarkymo technologijas. Radiologinių tyrimų aktualumą lemia poreikis žinioms apie į aplinką patenkančių radionuklidų poveikio aplinkai ir žmogui mastus, apie akumuliacijos ir sklaidos vyksmus biosferos sanduose. Šios žinios apie technogeninių radionuklidų elgseną branduolinių elektrinių, radioaktyviųjų atliekų saugyklų ir kitų branduolinės energetikos objektų apsauginių barjerų sistemose ir geosferos sanduose aktualios ir svarbios užtikrinant šios ir ateinančių žmonijos kartų radiacinę saugą.

Radioekologiniu požiūriu vienas iš svarbiausių radionuklidų biotoje yra radioanglis. Radioanglis (^{14}C) yra gamtinis radioaktyvusis anglies izotopas ($T_{1/2} = 5730 \pm 40$ metų). ^{14}C susidaro viršutiniuose atmosferos sluoksniuose azoto branduoliui sąveikaujant su atmosferoje sulėtintais

kosminės spinduliuotės pagamintais neutronais. Vertinama, kad žemėje yra apie 8500 PBq (75 tonos), o atmosferoje apie 140 PBq (1,24 tonos) radioanglies. Kitas reikšmingas radioanglies šaltinis – branduolinių, o ypač termobranduolinių, ginklų bandymai atmosferoje. Eksperimentiškai įvertinta, kad 1945 – 1964 metais vykdytų bandymų metu į atmosferą pateko apie 220 PBq (1,94 tonos) radioanglies. Branduoliniai reaktoriai, nors ir mažesnio masto, kaip aukščiau paminėti, yra svarbus antropogeninis ne tik lokalias, bet ir globaliosios atmosferos taršos radioanglimi šaltinis.

Atmosferoje esantis radioanglies dioksidas ($^{14}\text{CO}_2$) kartu su stabiliosios anglies dioksidais dalyvauja fotosintezės procese ir per maisto grandinės patenka į gyvuosius organizmus, kur tampa reikšmingu vidinės apšvitos radionuklidu. Todėl ypač aktualiomis tampa naujos mokslinės žinios apie radioanglies emisijų valdymą iš branduolinės energetikos objektų, mokslinių tiriamųjų reaktorių ir kitų branduolinių įrenginių tiek normalios eksploatacijos metu, tiek avarinėse situacijose. Svarbu atskleisti ir eksperimentiškai pagrįsti pavojingų radionuklidų sklaidos ir kaupimosi aplinkos sanduose bei patekimo į žmogaus organizmą mechanizmus, o taip pat įvertinti keliamą pavojų vidinės apšvitos atveju.

Darbo tikslas ir uždaviniai:

Šio darbo tikslas – eksperimentiškai ištirti branduolinės jėgainės technologinių procesų įtaką radioanglies balanso aplinkoje kaitai viso eksploatacijos laikotarpio metu, sukurti modelį radioanglies emisijoms, sklaidai, kaupimuisi aplinkos sanduose ir radiaciniam poveikiui aplinkai ir gyventojams vertinti bei pritaikyti radioanglies datavimo metodiką hidrologiniams ir biologiniams procesams aplinkoje tirti. Šiems tikslams įgyvendinti keliami uždaviniai:

1. Išmatuoti radioanglies metinės koncentracijos kaitą nuo Ignalinos atominės elektrinės (AE) eksploatacijos pradžios iki šių dienų medžių rievėse iš foninės vietovės ir iš Ignalinos AE poveikio zonos. Įvertinti foninių bandinių matavimo rezultatus ir palyginti su literatūros šaltiniuose pateikiama šiaurinio pusrutulio radioanglies koncentracijos kaitos metine eiga. Įvertinti bandinių imčių reprezentatyvumo, grafitizacijos ir kitų cheminių procesų bei greitintuvo masių spektrometro įtaką matavimo galimybėms ir tikslumui.
2. Sukaupiti duomenis apie Ignalinos AE galios kaitą ir kitus technologinius procesus susijusius su radioanglies emisijomis iš jėgainės į aplinką eksploatacijos ir eksploatacijos nutraukimo

- laikotarpiais. Nustatyti koki poveikį ^{14}C emisijoms iš Ignalinos AE galėjo turėti reaktorių modernizavimo darbai ir kokios to priežastys.
3. Įvertinti galimą Ignalinos AE eksploatacijos ir kitų procesų sukurtą antropogeninį poveikį vietiniams gyventojams ir apskaičiuoti papildomą efektingą apšvitos dozę.
 4. Sukurti radioanglies sklaidos Ignalinos AE aplinkoje modelį atsižvelgiant į atmosferos dinamikos įtaką sklaidos procesams atmosferoje, ištirti galimybę apskaičiuoti branduolinės energetikos objekto radioanglies metinės emisijas į aplinką ir įvertinti jų nulemtą apšvitos dozės prieaugį gyventojams.
 5. Įvertinti ^{14}C savitojo aktyvumo matavimų bioindikatoriuose pritaikymą kitų radionuklidų emisijų iš branduolinio objekto vertinimui, bei galimybes taikyti šį metodą taršos šaltinio charakterizavimui.
 6. Paimti Drūkšių ežero dugno nuosėdų stulpelio ėminius, išmatuoti radioaktyviojo anglies specifinio aktyvumo vertikalųjį profilį nuosėdose ir ištirti ^{14}C ciklą Drūkšių ežero vandens – dugno nuosėdų ekosistemoje, siekiant retrospektyviai charakterizuoti skystas nuotekas iš Ignalinos AE.

Autoriaus indėlis

Įsisavintos greitintuvo masių spektrometrijos tyrimų metodikos ir bandinių parengimo technologijos. Parengta bandinių rinkimo įranga ir surinkti tyrimams reikalingi bandiniai, atlikti radioanglies koncentracijų bandiniuose matavimai. Sukurtas radioanglies sklaidos modelis Ignalinos AE poveikio zonai (10 km spinduliu). Atsakingas už pateikiamų straipsnių metodinius ir eksperimentinius skyrius, aktyviai dalyvauta interpretuojant tyrimų rezultatus ir formuluojant išvadas.

Darbo naujumas:

Kompleksiškai ištirta AE eksploataavimo metu į aplinką patekusios ^{14}C sklaida atmosferoje ir fotosintezės nulemta radioanglies kaupimosi biotoje metinė eiga, sukurtas radioanglies susikaupimo medžiuose žemėlapis, pirmą kartą įvertintas technogeninės radioanglies nulemtas metinės apšvitos dozės prieaugis gyventojams Ignalinos AE 10 km spindulio zonoje. Pasiūlytas ir eksperimentiškai pagrįstas naujas netiesioginis metodas technogeninių radionuklidų emisijoms ir sklaidai branduolinio objekto aplinkoje rekonstruoti ir prognozuoti.

Ginamieji disertacijos teiginiai

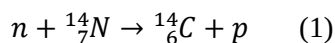
1. Radioanglies koncentracijos pokyčiai viršijantys fonines vertes, stebimi medžių rievėse Ignalinos AE 10 km zonoje, yra nulemti metinių ^{14}C emisijų iš jėgainės ir kokybiškai atspindi reaktoriaus galią – energijos gamybą bei technologinius aptarnavimo, remonto periodus eksploatuojant reaktorių ir išmontavimo darbus eksploatacijos nutraukimo metu.
2. Per visą Ignalinos AE eksploatacijos laikotarpį RBMK-1500 reaktorių nulemtos aplinkinių gyventojų (10 km spindulio zona) apšvitos, dėl ^{14}C išmetimų į atmosferą, tesudaro tik 0,5 % per maisto grandinę visų gamtinių radionuklidų kuriamos apšvitos dozės.
3. ^{14}C aktyvumas artimoje šaltinio aplinkoje gerai atspindi radiaciniu požimiū svarbių antropogeninių radionuklidų sklaidos aplinkoje mechanizmus ir gali būti naudojamas vertinant metinių radioanglies emisijų eigą objekto eksploatacijos metu nuklidinio vektoriaus metodu, kaip raktinis radionuklidas, preliminariam sunkiai matuojamų nuklidų koncentracijų vertinimui dujiniuose išmetimuose.

LITERATŪROS APŽVALGA

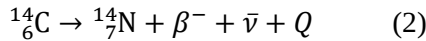
1.1. Radioanglis

Radioanglis yra ypatinga gamtos dovana. Aplinkoje aptinkami trys natūralūs anglies izotopai: ^{12}C , ^{13}C ir ^{14}C . ^{12}C izotopo kiekis yra didžiausias ir siekia 98,89 proc., ^{13}C izotopo – 1,11 proc., o ^{14}C kiekis yra itin mažas ir siekia $\sim 10^{-10}$ proc. (Wagner et al. 2018). 14 anglies izotopas yra radioaktyvus, kurio skilimo pusėjimo trukmė yra maždaug 5730 ± 40 metų (Godwin 1962). ^{14}C skilimas įvyksta į aplinką išspinduliuojant β -dalelę su maždaug 156 keV energija. Anglis yra ketvirtas pagal paplitimą elementas gamtoje, todėl anglies aptinkama visose gyvybės formose. Žmogaus organizme anglis sudaro 22,85 proc. bendros kūno masės, kur 1,828 μg yra 14 anglies izotopas. Anglis įeina į daugelio organinių junginių cheminę sudėtį, todėl yra itin patogus elementas atlikti įvairius tyrimus. Teoriją, kad gyvuose organizmuose yra ir ^{14}C radioaktyvaus izotopo, pirmą kartą 1946 m. iškėlė W.F. Libby. Jis kartu su kolegomis paskelbė mokslinę publikaciją, kurioje aprašyti jų atlikti eksperimentai su metano dujomis iš Baltimorės miesto kanalizacijos sistemos, kurių metu jiems pavyko surinkti mažą kiekį 14 anglies izotopo. Metano dujos iš iškastinio kuro neturėjo savo sudėtyje ^{14}C izotopo dėl savo itin senos prigimties. Šio tyrimo rezultatai buvo publikuoti 1947 m. *Science* žurnale, kur autoriai paskelbė apie organinės kilmės medžiagų amžiaus datavimo galimybę. Po kelerių metų eksperimentavimo, 1949 m. Libby su J. Arnold paskelbė naujų tyrimų rezultatus, kur radioanglies amžiaus datavimo būdu nustatytas mumijų amžius paklaidų ribose sutapo su archeologų nustatytomis mumijų amžiaus datomis. Už šį darbą 1960 m. W.F. Libby gavo chemijos Nobelio premiją (Bowman 1995, Key 2001). Neilgai trukus ^{14}C izotopas buvo praktiškai pritaikytas - įvairios organinės kilmės objektų ir medžiagų amžiaus datavimuose, o ^{14}C aktyvumo matavimai leido tirti įvairių atmosferos procesų spartą.

Natūraliai atmosferoje ^{14}C susiformuoja stratosferoje ir viršutiniuose troposferos sluoksniuose. Kosminiai spinduliai veikia atmosferoje esančias dujas, sąveikos metu susidarę šiluminiai neutronai dalyvauja n,p reakcijoje kurios produktas yra ^{14}C atomas:

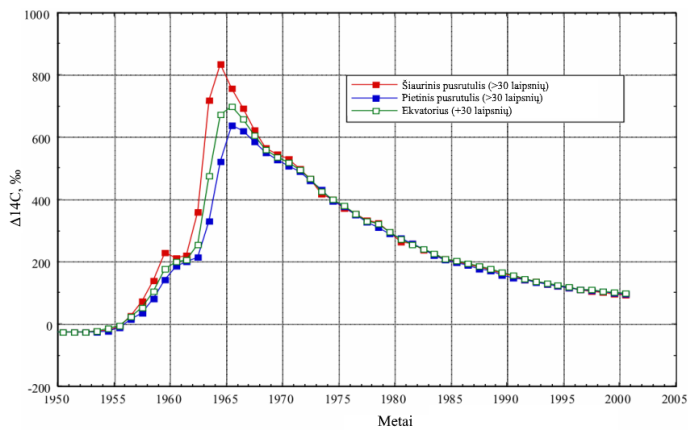


kur n yra neutronas ir p – protonas. ^{14}C radioaktyviojo skilimo produktas yra β -dalelė ir stabilus azoto atomas:



kur $\bar{\nu}$ yra antineutrinas ir Q – radioaktyviojo skilimo išlaisvinta energija.

Atmosferoje esantis radioanglies kiekis kinta ir svyruoja veikiamas saulės vėjo ir Žemės geomagnetinio lauko intensyvumo. Vidutiniškai radioanglies yra apie 1,57 atomo per $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, o vidutinė kosmogeninė ${}^{14}\text{C}$ generacija siekia nuo 2 iki 3 ${}^{14}\text{C}$ atomų per $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ (Suess 1965, Damon et al. 1978, O'Brien 1979, Masarik and Reedy 1995). Tai sudaro 226 Bq/kgC savitąjį aktyvumą sausumos biomasėje, kuris buvo iki 1950 metų. Globalus ${}^{14}\text{C}$ inventorių tiek sausumoje tiek atmosferoje siekia 8500 PBq arba maždaug 75 t radioanglies.



1 pav. Branduolinių ginklų bandymų nulemtas ${}^{14}\text{C}$ impulsas skirtingose Žemės hemisferose (Santos et al. 2006)

Nuo 1880 metų ${}^{14}\text{C}$ pradeda staigiai ir intensyviai mažėti. Ši data ir stebimas ${}^{14}\text{C}$ koncentracijos mažėjimas rodo industrinės revoliucijos pradžią, kurios metu pradėtas naudoti toks iškastinis kuras kaip anglis, dujos ir nafta. Dideli kiekiai sudeginamo iškastinio kuro į atmosferą išmetė CO_2 , kuris yra itin senas (milijonai metų) ir savo sudėtyje turi itin mažą kiekį ${}^{14}\text{C}$. Šio proceso, pavadinto Hans E. Suess garbei, metu atmosferoje esantis ${}^{14}\text{CO}_2$ buvo pradėtas skiesti CO_2 , kuris yra nuskurdintas radioanglimi, dėl to pradėjo mažėti ${}^{14}\text{C}$ koncentracija atmosferoje. XX amžiaus viduryje Suesso efektas buvo kompensuotas branduolinių ginklų testavimo programos. 1945 metų liepos 16 d. Jungtinių Amerikos Valstijų mokslininkai atliko pirmąjį branduolinio ginklo bandymą atmosferoje. Tai buvo pirmasis, bet ne paskutinis branduolinio ginklo bandymas atmosferoje iki 1963 metų, kai buvo sudaryta sutartis draudžianti tolimesnius branduolinių ginklų bandymus

atmosferoje. Per šį trumpą laikotarpį į atmosferą buvo išmestas didelis kiekis antropogeninės radioanglies, kuri natūralią ^{14}C izotopo koncentraciją atmosferoje beveik padvigubino (1 pav.).

1.2. Anglies ciklas

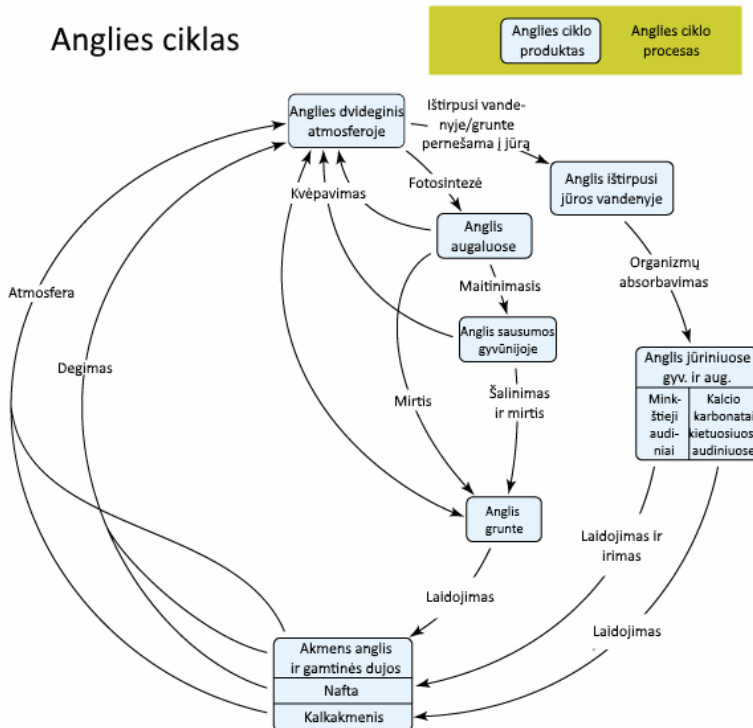
Visos gyvybės formos Žemėje egzistuoja anglies pagrindu. Įvairūs organiniai junginiai ir medžiagos turinčios anglies įvairiomis formomis yra pasklidusios visoje atmosferoje, sausumoje ir hidrologinėje aplinkoje. Šie junginiai skirtingais laikotarpiais tarp anglies rezervuarų cirkuliuoja įvairių fizinių ir cheminių mechanizmų dėka. Tačiau šiuose anglies ciklo procesuose vyrauja dvi susikertančios ir sąveikaujančios geofizinės ir geocheminės sistemos.

Pirmoji sistema apima įvairių cheminių medžiagų mainus tarp atmosferos ir vandens. Šie cheminiai junginiai apima ištirpusią organinę anglį (DOC) ir ištirpusią neorganinę anglį (DIC) anglies dioksido, karbonatų ir bikarbonatų pavidalu. Antroji sistema apima sausumos ir vandens telkinių fotosintezės ciklus, kuriems būdingi sudėtingi biocheminiai procesai, siejantys atmosferos anglies dioksido fiksavimą augalinėse medžiagose ir nedidelės šios augalinės biomasės dalies patekimą į gyvūninius audinius. Vėliau šios biomasės irimas ir skilimas sukuria anglies dvideginio ir metano dujų išsiskyrimą atgal į atmosferą. Be šių aktyvių procesų taipogi veikia kur kas ilgesni ir lėtesni geologiniai cheminiai ir fiziniai procesai, tokie kaip karbonatų nusėdimas sausumos ir vandenyno nuosėdose bei vulkaninė veikla, kurie vaidina svarbų vaidmenį anglies cikle.

Anglies ciklas supaprastintai pavaizduotas 2 paveiksle. Paveiksle vaizduojami trys pagrindiniai aktyvūs anglies baseinai (rezervuarai), kurie apibendrintai suskirstyti į atmosferos, sausumos ir vandenynų rezervuarus. Taip pat schemeje vaizduojami mažesni pereinamieji arba trumpalaikiai anglies rezervuarai. Atmosferoje sukaupta maždaug 600 Gt (1,5 %) visos anglies, sausumoje – 1600 Gt (4 %), o vandenynuose – 37000 Gt (91 %). Didžiausias ištirpusios anglies rezervuaras yra gilesniuose vandenynų sluoksniuose ir sudaro 64 % cikle dalyvaujančios anglies (26000 Gt). Remiantis šiais duomenimis, šiek tiek daugiau nei 90 % visos ^{14}C yra sutelkta pasaulio vandenynuose. Vandenynų anglies rezervuaras gali būti suskirstytas į paviršines, tarpines ir giliausias vandenynų zonas, kur anglis yra sukaupta neorganinių ir organinių medžiagų, įskaitant karbonatus ir bikarbonatus bei DOC pavidalu (Taylor and Bar-Yosef 2016).

Anglies mainų greitis tarp dinaminių anglies rezervuarų ir santykinai neaktyvių rezervuarų, pavyzdžiui, kontinentiniuose šelfuose esančių

karbonatų kalkakmenio nuosėdos, biomasė pakrančių pelkėse (lagūnose, pelkėse, įlankose ir deltose) ir anglis sukaupia užšalusiose nuosėdose, gali būti toks, kad šiuose rezervuaruose esanti anglis gali būti saugoma ilgą laiką, nesimaišant ir kitaip nesąveikaujant su kitais rezervuarais. Dėl tokių santykinai lėtų maišymosi greičių šiose medžiagose žymiai sumažėja ^{14}C savitasis aktyvumas dėl radioaktyviojo skilimo, todėl šiose medžiagose pastebimas rezervuaro efektas, galintis vienaip ar kitaip paveikti tiek trumpalaikius tiek ilgalaikius anglies ciklo procesus (Ramsey et al. 2012a).



2 pav. Supaprastinta anglies rezervuarų schema. Rodyklės vaizduoja anglies mainų tarp rezervuarų kelius. Adaptuota pagal (Sulzman 2000).

Anglies kiekiai sausumos ir vandens augaluose siekia tik 600 Gt ir 25 Gt atitinkamai. Iš atmosferos tik santykinai nedidelė dalis ^{14}C inventoriaus tampa sausumos biosferos dalimi, pirmiausia įtraukiant ^{14}C į augalų biomasę, vėliau į organizmus, kurių mitybos grandinėje yra įvairių augalų rūšių. Tai reiškia, kad visuose sausumos augaluose ir gyvūnuose, kurie yra tiesiogiai ar netiesiogiai priklausomi nuo augalų, kaip maisto šaltinio, sukaupiama būdinga ^{14}C dalis. Didelė ^{14}C koncentracija vandenynuose veikia kaip buferinis rezervuaras, kuris veiksmingai slopina

didelius sausumos ^{14}C savitojo aktyvumo svyravimus. Būtent dėl to bet koks didesnis trumpalaikis (<100 metų) ^{14}C savitojo aktyvumo sutrikdymas sausumoje neturės pastebimos įtakos aktyvumo vidutinei vertei vandenynuose (Taylor and Bar-Yosef 2016).

Nuo pat radioanglies atradimo ir detalesnių studijų pradžios buvo žinoma, kad natūralios ^{14}C susidarymas iš ^{14}N atmosferoje nėra vienodas geografinės vietovės atžvilgiu. Atmosferoje susidarancio ^{14}C kiekis tiesiogiai priklauso nuo neutronų intensyvumo, o kosminių spindulių neutronų intensyvumas skiriasi lyginant geomagnetinius polius (vidutiniškai keturis kartus didesnis) ir pusiaują (Joris and Weninger 1998). Pagrindinė šio efekto priežastis yra apsauginis žemės magnetinio lauko poveikis, kuris atspindi dalį mažesnės energijos kosminių spindulių atgal į kosmosą. Neutronų srauto intensyvumas priklauso nuo šio ekranavimo efekto skirtingose geomagnetinėse platumose. Tai lemia skirtingą ^{14}C susidarymo intensyvumą viršutiniuose atmosferos sluoksniuose. Nors $^{14}\text{CO}_2$ koncentracija pasiskirsto tolygiai maišantis atmosferai, prie žemės paviršiaus kartais galima užregistruoti nedidelius ^{14}C savitojo aktyvumo skirtumus priklausomai nuo regiono. Minze Stuiver ir Thomas F. Braziunas (1993) ir kitos mokslininkų grupės atliko anglies rezervuarų ir anglies mainų tarp jų modelių skaičiavimus ir teigia, kad bet kokie regioniniai nukrypimai ir sukuriamas rezervuaro poveikis, lyginant su ^{14}C vidutine verte šiauriniame pusrutulyje, neturėtų trukti ilgiau nei 20 metų (Stuiver and Braziunas 1993, Reimer et al. 2004, 2013).

1.3. Antropogeniniai radioanglies šaltiniai

Absolūtus radioanglies kiekis atmosferoje ir biosferoje priklauso ne tik nuo natūralaus ^{14}C izotopo susidarymo, bet ir nuo antropogeninių (žmonių veiklos nulemtų) šaltinių poveikio. Šie šaltiniai gali turėti tiek globalų, tiek ir lokalų poveikį ^{14}C savitajam aktyvumui ore. Per pastaruosius du šimtmečius ^{14}C savitajam aktyvumui įtakos turėjo ir turi aktyvus iškastinio kuro deginimas. Šio kuro deginimas į aplinką išskiria CO_2 , kurio sudėtyje yra tik 12 ir 13 anglies izotopai ir tai sukuria jau minėtą radioanglies skiedimo procesą vadinamą Sueso efektu.

Po 1950 metų Sueso efektas buvo užgožtas žmonių veiklos - branduolinių ginklų bandymų ir branduolinės energetikos plėtojimo. Taip atsirado ne natūralus radioanglies šaltinis atmosferoje. Didžiausias žinomas tokios radioanglies šaltinis buvo nuo 1945 metų iki 1980 metų vykdomi branduolinio ginklo bandymai atmosferoje (UNSCEAR 2000). Didžioji dalis neutronų, išspinduliuotų branduolinio ginklo sprogdimo metu, buvo sugauti

azoto atomų, taip susiformuojant ^{14}C priaugį (Latter and Plesset 1960). Maksimalus 450 Bq/kg ^{14}C aktyvumas atmosferoje buvo užfiksuotas šiaurinėje hemisferoje 1963 metais, ir tai du kartus viršijo natūralų ^{14}C aktyvumą (Levin and Kromer 2004). Nuo 1963 metais pasiekto maksimumo, ^{14}C aktyvumas ore stabiliai mažėja iki šių dienų dėl sugerties biosferoje ir vandenynuose. Dabartinis 101 pMC (228,26 Bq/kg C) ^{14}C savitasis aktyvas ore yra sumažėjęs ir beveik prilygsta natūraliam fonui, kuris siekia 100 pMC (Pabedinskas et al. 2019).

Šiuo metu vieninteliai antropogeniniai radioanglies šaltiniai yra branduolinės energetikos industrijos objektai. 2020 metų duomenimis, yra eksploatuojamas 441 branduolinis reaktorius, kurių pagaminama energija sudaro 10,1 % visos suvartojamos elektros energijos (Secretariat of the World Nuclear Association 2021). ^{14}C susidaro visuose branduoliniuose reaktoriuose neutronams sąveikaujant su anglies, azoto ir deguonies turinčiomis medžiagomis. Radioanglis susidariusi kietose medžiagose – reaktoriaus konstrukcijose dėl priemaišų aktyvacijos, dažniausiai negali patekti į aplinką. Tačiau radioanglis, kuri susidaro branduolinių reakcijų metu neutronams sąveikaujant su priemaišomis branduoliniame kure ar aušiklyje, gali patekti į aplinką per kuro apvalkalo trūkius nehermetiškų kuro rinklių atveju, panaudoto branduolinio kuro perdirbimo proceso metu ar iš branduolinio reaktoriaus aušinimo sistemos (UNSCEAR 2000, IAEA 2004). Įprastos reaktoriaus eksploatacijos metu didžiausi ^{14}C kiekiai pasišalina iš aušinimo sistemos, kur ^{14}C gali būti tiek CO_2 , tiek CH_4 dujų pavidale (IAEA 2004). Padidėjęs $^{14}\text{CO}_2$ aktyvumo lygis regione gali lemti papildomą jonizuojančios spinduliuotės dozę, nes $^{14}\text{CO}_2$ yra lengvai pasisavinama biosferoje. Metano $^{14}\text{CH}_4$ dujos negali būti absorbuotos augalų, todėl išsisklaido atmosferoje ir sukuria globalų poveikį ^{14}C balansui (UNSCEAR 2000).

Naujausių tyrimų duomenimis $^{14}\text{CO}_2$ emisijos iš antropogeninių šaltinių siekia apie 135 TBq per metus (Zazzeri et al. 2018). ^{14}C išmetimai priklauso nuo branduolinio objekto dizaino ir yra skirtingi kiekvienam branduolinių reaktorių tipui (UNSCEAR 2000). Panaudoto branduolinio kuro (PBK) perdirbimo objektuose ^{14}C tiesiogiai nesusidaro, tačiau išlaisvinama kure sukaupta ^{14}C , taip pat dalis ^{14}C lieka konstrukcinėse reaktoriaus medžiagose ir radioaktyviosiose atliekose – tai taip pat svarbūs ^{14}C šaltiniai.

Skirtingų technologinių dizainų branduoliniai reaktoriai ^{14}C į aplinką išmeta skirtingais būdais ir keliais, kadangi ^{14}C susidaro branduoliniame reaktoriuje iš ^{14}N , ^{17}O ir ^{13}C nuklidų esančių aušiklyje, struktūrinėse medžiagose ir kure (Yim and Caron 2006a). Iš visų šiuo metu veikiančių ir

elektros gamybai naudojamų branduolinių reaktorių, daugiausiai yra suslėgto lengvojo vandens reaktorių (PWR). Ir nors jų išmetami ^{14}C kiekiai galios vienetui (GWe) yra mažiausi, bendras PWR tipo branduolinių reaktorių generuojamas ^{14}C kiekis yra didžiausias (IAEA 2020). Nuo 70 % iki 95 % ^{14}C pagamintos tokio tipo reaktoriuose yra CH_4 pavidalu, todėl ^{14}C tiesiogiai biosferoje nėra fiksuojama ir yra tiriama kitais būdais, dažniausiai surenkant šarmo tirpalais pačioje jėgainėje (Kunz 1985, Stricht ir Janssens 2010) arba apskaičiuojant iš PWR darbinių parametrų, panaudojant teorinius ^{14}C išmetimų įvertinimo modelius (EPRI 2010). Siekiant įvertinti ne lokalius reiškinius, o globalius išmetimus, dažniausiai ^{14}C išmetimai apskaičiuojami iš generuojamos elektrinės galios (Graven and Gruber 2011). Globaliniu mastu ^{14}C išmetimai iš LWR ir kitų branduolinių objektų yra santykinai nedidelės palyginus su natūralia ^{14}C generacija ir sudaro tik 11 % (Turnbull et al. 2009, Graven et al. 2012). Tačiau branduoliniai objektai turi ryškų lokalių (Levin et al. 2003) ir regioninį poveikį (Graven et al. 2012), kurį, savo ruožtu, gali maskuoti iškastinio kuro deginimo metu išmestas CO_2 su nuskurdintu izotopiniu santykiu.

Zazzeri ir bendraautorai atnaujino branduolinių elektrinių pagamintos elektros ir ^{14}C emisijos duomenų bazę, kuri apima laikotarpį nuo 1972 iki 2016 metų (Zazzeri et al. 2018). ^{14}C emisijos faktoriai įvairiems reaktoriams yra pateikti 1 lentelėje, jų apskaičiavimams Graven ir Gruber (Graven and Gruber 2011) panaudojo UNSCEAR 2000 (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. 2000) ataskaitoje pateikiamus duomenis. UNSCEAR 2000 ataskaitoje pateikiami ^{14}C išmetimų faktoriai iš RBMK-1500 reaktorių yra mažesni nei faktiniai išmetimai, nes apskaičiavimui buvo naudojami tik dujiniai ^{14}C išmetimai (Magnusson 2007). Konstantinov ir kiti RBMK branduolinių reaktorių ^{14}C išmetimų faktorių skaičiavimus atliko trims galimiams ^{14}C šaltiniams. Pirmasis – reaktoriaus korpuse esančiose aušinimo dujose sukaupta ^{14}C , antrasis – aušiklyje ištirpusi ^{14}C ir trečiasis – dujiniu keliu per ventiliaciją pašalinama ^{14}C . Visų trijų dedamųjų koeficientų suma yra pateikta 1 lentelėje.

Atlikti tyrimai rodo, kad radioanglies išmetimai iš branduolinių reaktorių gali svyruoti. Pavyzdžiui, 1998 metais $^{14}\text{CO}_2$ savitasis aktyvumas ore prie 600 MW_{el} CANDU Cernavoda AE (180 km nuo Bukarešto) siekė 250 Bq/kg C (110 pMC) balandžio mėnesį ir 440 Bq/kg C (193 pMC) mėnesiu vėliau. Visu likusiu tų metų laiku ^{14}C savitasis aktyvumas ore išliko ~280 Bq/kg C (123 pMC) (Tenu et al. 2002). Ši radioanglis kaupėsi apylinkių biosferoje. Magnusson ir bendraautorių atlikti žolės ir kitų augalų surinktų vegetacijos laikotarpiu bandinių matavimai 1999 ir 2001 metais

parodė, kad 1000 m spinduliu aplink Cernavoda AE ^{14}C savitojo aktyvumo padidėjimas siekė 311 Bq/kg C (137 pMC) (Magnusson et al. 2004).

1 lentelė. Skirtingo tipų branduolinių reaktorių ^{14}C metiniai emisijų faktoriai su 70 % pasiklivimo intervalu (Konstantinov et al. 1989, Graven and Gruber 2011, Zazzeri et al. 2018).

Branduolinio reaktoriaus klasė	Branduolinio reaktoriaus tipas	^{14}C emisijos faktorius (TBq/GWm)	Branduolinių reaktorių pagrindiniai techniniai ypatumai
LWRs (angl. <i>Light Water Reactors</i>)	PWR	0,24 [0,11-0,52]	Branduolinio reaktoriaus aušinimas ir neutronų lėtinimas užtikrinami įprastu vandeniu.
	BWR	0,51 [0,17-0,85]	
GCRs (angl. <i>Gas Cooled Reactors</i>)	AGR	1,4 [0,69-2,08]	Branduolinio reaktoriaus aušinimas užtikrinamas dujomis, o neutronų lėtinimas grafitu.
	Magnox GCR	5,5 [2,09-9,23]	
PHWRs (angl. <i>Pressurized Heavy Water Reactors</i>)	HWR (CANDU)	1,6 [0,27-7,04]	Branduolinio reaktoriaus aušinimas ir neutronų lėtinimas užtikrinami sunkiuoju vandeniu (D_2O). Kanadiečių CANDU reaktoriai yra vieninteliai šio tipo komerciniai branduoliniai reaktoriai.
LWGRs (angl. <i>Light Water Graphite Reactors</i>)	LWGR	1,3 [0,5-2,1]	Branduolinio reaktoriaus aušinimas užtikrinamas įprastu vandeniu, o neutronų lėtinimas – grafitu. Tai buvusios TSRS branduolinių reaktorių tipas iš kurių labiausiai paplitęs RBMK (nuo Rusiško akronimo - Kanalinis Didelės Galios Reaktorius). Reaktoriaus pagrindinis ypatumas - neutronų lėtinimui naudojamas grafito klojinys, kuriame esančius kanalus su branduolinio kuro rinklėmis aušina verdantis vanduo.
	RBMK	1,4	

Vengrijos Paks AE turi 4 VVER tipo energetinius blokus, kurie generuoja apie 2 GW elektrinę galią ir pagamina apie 15000 GWh elektros energijos. Ši branduolinė elektrinė pasižymi tuo, kad tik 28 % ^{14}C emisijų yra $^{14}\text{CO}_2$ pavidalu ir gali būti įsisavinta biosferos. Likusioji 72 % $^{14}\text{CH}_4$ dalis išsisklaido atmosferoje. Siekiant įvertinti ^{14}C emisijas iš šio branduolinio objekto Janovics ir kiti atliko ^{14}C savitojo aktyvumo matavimus medžių rėvių bandiniuose nuo 2000 iki 2009 metų. Jie pastebėjo, jog medžių rievėse prie Paks AE ^{14}C savitasis aktyvumas yra $5,5 \pm 1,4$ ‰ didesnis negu foninėje vietovėje Dunaföldvár (Janovics et al. 2013a). Molnár ir kitų atlikti ore esančios $^{14}\text{CO}_2$ matavimai nuo 2000 iki 2005 metų vegetaciniu laikotarpiu, parodė jog ^{14}C savitasis aktyvumas buvo didesnis 12 ± 5 ‰ (Molnár et al. 2007).

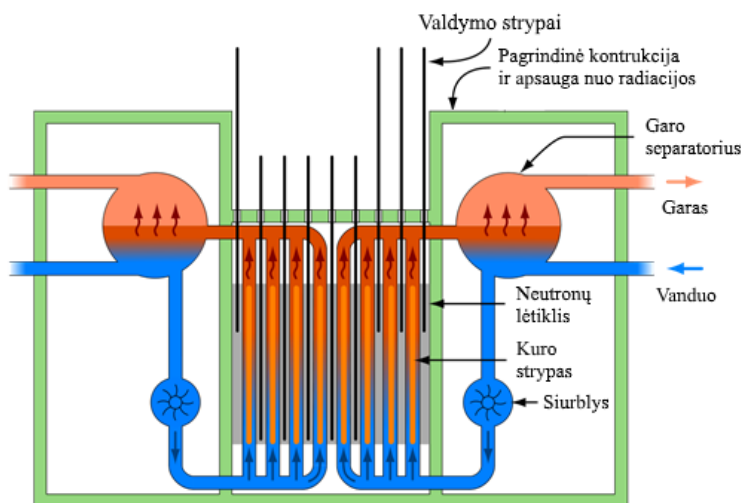
Taigi biosferos tyrimai aplink branduolinius objektus rodo, kad priklausomai nuo branduolinio objekto dizaino, konstrukcijos, eksploatavimo ir elektrinės galios, sukuriami kiekvienam branduoliniam objektui unikali $^{14}\text{CO}_2$ tarša. Biosfera pasižymi itin naudingomis savybėmis užfiksuoti šią taršą ir sudaro galimybes sekti, prognozuoti ir įvertinti taršos kelius iš branduolinio objekto, leidžia ^{14}C izotopą naudoti kaip žymeklį kitų radionuklidų sklaidai stebėti. Reikia pastebėti, kad branduolinio objekto įprastos eksploatacijos metu ^{14}C išmetimai nesukuria ženklaus pavojaus jo apylinkių gyventojams ir biosferai.

1.4. ^{14}C tyrimai Lietuvoje

Kanalinis didelės galios reaktorius (RBMK) – tai viena iš lengvuju vandeniu aušinamų branduolinių reaktorių klasių. Šie reaktoriai yra kanalinio tipo, kur neutronų lėtinimo funkciją atlieka grafitas (Neeb 1997, Almenas et al. 1998). Šio tipo branduoliniai reaktoriai: RBMK-1500 ir RBMK-1000. 1974 m. buvo pradėti parengiamieji Ignalinos AE statybos darbai („Ignalinos atominė elektrinė - Istorija“). Pagal projektą buvo numatyta pastatyti keturis energetinius blokus su RBMK-1500 tipo reaktoriais. 1983 m. pabaigoje buvo paleistas pirmasis blokas, o tuo metu šalia buvo statomas antrasis, kuris buvo pardėtas eksploatuoti 1987 metais. Antrasis blokas turėjo pradėti savo darbą metais anksčiau, bet 1986 m. balandžio 26 d. Černobylio atominėje elektrinėje įvykus avarijai, paleidimo data dėl papildomų saugumo sistemų diegimo darbų buvo nukelta. Pirmasis blokas galutinai sustabdytas buvo 2004 metais gruodžio 31 d., o antrasis blokas – 2009 metais gruodžio 31 d. Iš viso Ignalinos AE dirbo 26 metus, iš kurių pirmasis blokas dirbo 21, o antrasis – 22 metus. Per visą

eksploatavimo laiką elektrinė pagamino 271418,214 GWh elektros energijos (IAEA 2017).

Daugybė vamzdžių aktyviojoje zonoje pablogina reaktoriaus neutronų lėtinimo savybes. Siekiant jas pagerinti, RBMK tipo reaktoriuose naudojamas gerai greituosius neutronus lėtinantis ir nedaug jų sugeriantis grafitas. Reaktoriaus aktyvioji zona yra sudaryta iš grafito blokų klojinio, kur kiekvienas grafito blokas yra pervertas kanalo. Iš viso reaktoriuje yra 2052 kanalai, iš kurių 1661 kanalas skirtas kuro rinklių talpinimui, o 235 – valdymo strypams ir 156 – grafitiniam reflektoriui aušinti. Dauguma reaktoriaus kuro rinklių ir kanalų komponentų yra pagaminti iš cirkonio-niobio lydinio, kuris pasižymi itin maža įtaka neutronų kinetikai ir geromis temperatūrinėmis savybėmis. RBMK-1500 reaktoriuje naudojamas urano dioksido kuras yra įsodrintas ^{235}U nuo 2,0 % iki 2,8 %. Kad grafito klojinys būtų apsaugotas nuo oksidacijos ir būtų pagerintas šilumos perdavimas, reaktoriaus tūris yra apsuptas plieninio korpuso, kuris yra užpildytas helio ir azoto dujų mišiniu. Šio dizaino BR susidariusi šiluma yra perduodama aušinimo vandeniui, kuris yra paduodamas į reaktoriaus aktyviąją zoną iš apačios, kiekvienam kanalui atskirai. Užviręs vanduo yra atskiriamas garo separatoriuje ir siurblių pagalba gražinamas atgal į kanalus, o susidarę garai nukreipiami į garo turbinas. Energiją praradę garai yra kondensuojami ir gražinami į garo separatorių, kur susimaišo su prieš tai atskirtu karštu vandeniu iš aktyviosios zonos. Principinė RBMK-1500 reaktoriaus schema pateikta 3 pav.

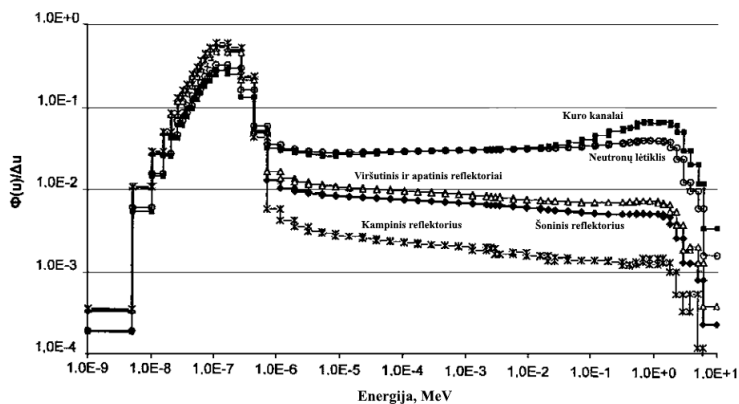


3 pav. RBMK-1500 reaktoriaus aktyviosios zonos ir jos aušinimo schema
(“Ignalinos atominė elektrinė - Istorija”).

Kaip ir visuose branduolinės energetikos objektuose, kurie generuoja neutroninę spinduliuotę, taip ir RBMK-1500 branduoliniame reaktoriuje susidaro antropogeninė radioanglis. Šio tipo reaktoriuje pagal Gaiko ir kitų (1986) skaičiavimus ir modeliavimus apie 90 proc. ^{14}C yra pagaminama neutronų lėtiklyje – grafito klojinyje, kuri lieka įstrigusi kristalinėje gardelėje arba grafito klojinio paviršiuje. Dėl šios priežasties ne visa ^{14}C gali patekti į kitas terpes, per kurias įmanomas patekimas į atmosferą. Likusioji radioanglis, susidariusi dėl azoto, esančio grafito klojinį aušinančiose dujose sąveikos su neutronais, gali patekti į aplinką atliekant specialaus dujų rezervuaro ventiliavimą ar aušinimą. Ignalinos AE abiejų energijos blokų struktūroje esama apie 3800 tonų grafito. Grafitas RBMK tipo BR atlieka neutronų lėtiklio ir reflektoriaus funkcijas, todėl visu branduolinių reaktorių eksploatacijos metu grafitas yra veikiamas intensyvios neutroninės spinduliuotės. Nustatyta, kad tik keli procentai bendrai susidarancios ^{14}C reaktoriuje susidaro per branduolines reakcijas, kurių metu vyksta dalijimasis į tris skeveldras (Otlet et al. 1992). Grafito ^{14}C susidaro dėl ^{13}C izotopo neutronų pagavos grafito gardelėje, dėl priemaišinių ^{14}N ir ^{17}O izotopų neutronų aktyvacijos (Yim and Caron 2006a). Panašūs procesai vyksta ir kituose reaktoriaus komponentuose, kur aktyvacijos procesų metu ^{14}C susidaro dėl priemaišinių medžiagų aktyvacijos. Azotas yra viena iš pagrindinių priemaišinių medžiagų, dėl kurios vykstant $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ reakcijai BR susidaro daugiausiai ^{14}C . Ši (n,p) reakcija yra labiausiai tikėtina dėl didelio azoto neutronų pagavos skerspjūvio. RBMK-1500 reaktoriuose ^{14}N koncentracija aktyvioje zonoje priklauso nuo keleto inžinerinių faktorių: grafito klojinyje – nuo pradinio priemaišų kiekio ruošiant grafito blokus, o grafito klojinio aušinimo dujų kontūre – nuo cirkuliuojančių dujų sudėties, kuri per Ignalinos AE eksploataciją keitėsi ir buvo sudaryta tiek iš helio, tiek iš azoto, tiek ir iš šių dujų mišinio.

Esama daug skirtingų tyrimų siekiant įvertinti RBMK reaktoriuose naudojamų medžiagų įtaką ^{14}C susidarymui. D. Ancius su bendraautorais 2005 metais publikuotame tyrime įvertino įvairių radionuklidų kiekius jonizuojančios spinduliuotės paveiktame Ignalinos AE grafito (Ancius et al. 2005). Tyrimas buvo atliktas dviem nepriklausomais metodais apimant visą neutronų energijų spektrą, grafito esančias priemaišas ir spalacijos neutronų srautą skirtingose reaktoriaus struktūros komponentuose. Skaičiavimai atskleidžia, kad esant fiksuotam neutronų srautui ^{14}C susidarymo kiekiai grafito iš ^{13}C izotopo sutampa su ^{14}C susidarymo kiekiu iš ^{14}N izotopo, jei priemaišinio ^{14}N koncentracija siekia 7 ppm. ^{14}N (n,p) reakcijos metu priklausomai nuo neutronų energijos, ^{14}C gamyba didžiausia esant šiluminiais neutronams (95,92%), kurie sudaro 55% viso neutronų srauto.

Epiterminiai (32,68 %) ir greitieji (11,82 %) neutronai prisideda tik 4,08 % prie ^{14}C gamybos grafite. RBMK-1500 branduolinio reaktoriaus neutronų srautas skirtinguose grafito konstrukcijos srityse yra pateiktas 4 paveiksle. Didžiausios energijos neutronai aptinkami kuro kanalų konstrukciniuose grafitiniuose žieduose ir neutronų lėtiklyje. Ties šiais žiedais aptinkama apie 48 % terminių neutronų, kadangi šie konstrukciniai elementai yra arčiausi greitųjų neutronų šaltinio – branduolinio kuro. Apie 56 % terminių neutronų yra aptinkami grafito klojinyje ir net 90 % – reflektoriuje (Ancius et al. 2005).



4 pav. Neutronų srauto energijos spektras skirtinguose RBMK-1500 reaktoriaus komponentuose. Adaptuota pagal (Ancius et al. 2005).

R. Plukienės ir bendraautorių 2018 ir 2020 metais pateiktose publikacijose yra atlikti pateikti tolimesni ir išsamesni grafito aktyvacijos tyrimai (Plukienė et al. 2018, Plukienė et al. 2020). Siekiant detaliau ištirti modeliavimo rezultatus, buvo atlikti ^{14}C savitojo aktyvumo grafite matavimai ir modeliniai skaičiavimai. Tyrimo metu nustatyta, kad ^{14}C savitasis aktyvumas grafito bandiniuose siekė nuo 130 iki 700 kBq/g, tai leido apskaičiuoti azoto priemaišų koncentraciją, kuri siekė nuo 15 ± 4 iki 80 ± 10 ppm bandiniuose iš įvairių reaktoriaus aktyviosios zonos dalių (Plukienė et al. 2020, Remeikis et al. 2021).

RBMK-1500 reaktoriuje grafito klojinio aušinimui naudojamos azoto ir helio dujos buvo veikiamos intensyvios neutroninės spinduliuotės. Beveik visa ^{14}C galinti patekti į aplinką susidarė šiame aušinimo kontūre. Šio kontūro valymas nuo susidariusių radionuklidų buvo užtikrinamas azoto-helio dujų mišinį leidžiant per ceolito gaudyklę. Atliekant ceolito gaudyklės regeneraciją, susidariusios dujos leidžiamos per filtrus ir išleidžiamos į aplinką per pagrindinę ventiliaciją. Pagal Konstantinov ir Gaiko tyrimus

susidariusi ir į aplinką patenkanti radioanglis daugiausiai sudaro CO₂ junginius. Ignalinos AE kiekvienas energetinis blokas turi individualius 150 m aukščio ventiliacijos kaminus, per kuriuos po filtravimo yra pašalinamos visos dujos. Radioanglis, esanti CO₂ sudėtyje, nėra išfiltruojama, todėl ji patenka į aplinką (Gaiko et al. 1985, Konstantinov et al. 1989).

Švedijos iniciatyva Ignalinos AE buvo atlikti reaktoriaus aktyviosios zonos modernizacijos darbai, kurie prasidėjo 1998 metais. RBMK-1500 branduolinio reaktoriaus modernizavimas buvo atliekamas atveriant grafito klojinį aušinantį ir temperatūrinį stabilumą užtikrinantį kontūrą. Kiekvieno kanalo keitimas reikalavo kontūro atvėrimo ir ventiliavimo, todėl į aplinką patekto minėtų aušinimo dujų mišinio. Kiekvienais metais, kiekviename bloke, dėl modernizavimo buvo pakečiama vidutiniškai apie 10 kanalų. Darbų metu, ventiliuojamos dujos praeidavo tą patį valymo kelią ir būdavo pašalinamos į aplinką iš ceolito gaudyklės įprastu būdu, todėl į aplinką pateko didesnis ¹⁴CO₂ kiekis nei įprasto jėgainės eksploatavimo metu.

Patekusi į aplinką ¹⁴CO₂ molekulė yra asimiliuojama biosferos. Prof. Jono Mažeikos atlikti Ignalinos AE aplinkos biotos tyrimai parodė ¹⁴C savitojo aktyvumo kitimą nuo 96 pMC iki 123 pMC (angl. – *percent Modern Carbon*, 1 pMC = 2,27 Bq·kg⁻¹) pelyno augalo bandiniuose, 1996 m. surinktuose skirtingose elektrinės aplinkos vietose. 2001 m. pakartotiniai alksnio medžio lapų tyrimai parodė 107–178 pMC vertes (Jakimaviciute-Maseliene et al. 2003). Abiem atvejais didžiausio aktyvumo bandiniai buvo surinkti tose vietose, kur vyraujanti vėjo kryptis yra nuo branduolinio objekto (Mazeika et al. 2008). Visuose tirtuose pušų, eglių ir gluosnių bandiniuose iš Ignalinos AE apylinkių buvo nustatytas padidėjęs ¹⁴C savitasis aktyvumas, kuris net 10 – 80 pMC buvo didesnis samanų bandiniuose (Magnusson 2007). Taip pat daugelis kitų šalių mokslininkų panašių tyrimų atskleidė nedidelį ¹⁴C padidėjimą medžių augančių netoli branduolinių jėgainių rievėse, pavyzdžiui prie Barsebako (Švedija) ir Paks branduolinių jėgainių (Janovics et al. 2013a, Stenstrom et al. 2017). Taip pat Shengas Xu ir bendraautoriai nustatė, kad Fukušimos AE išmetami ¹⁴C kiekiai koreliuoja su branduolinės elektrinės generuojama elektrine galia (Xu et al. 2016). Tokie biosferos tyrimai atskleidžia, kad tai yra vienas geriausių įrankių radioanglies analizei atlikti, kuri gali padėti tiek identifikuoti lokalius ¹⁴CO₂ išmetimus, tiek vykdyti branduolinio objekto monitoringą (Mazeika et al. 2008, Koarashi et al. 2015).

Lietuvoje atliekami biosferos ir hidrosferos tyrimai aplink branduolinius objektus svarbūs ne tik tuo, kad įvertinami radioanglies ir kitų radionuklidų išmetimų mastai ir jų sukeliamą papildoma apšvita, bet ir (apjungti su Ignalinos AE struktūrinių medžiagų sudėties analize ir

modeliavimu) leido nustatyti radioanglies ir kitų ilgaamžių radionuklidų sukauptus kiekius ir koncentracijas Ignalinos AE reaktorių komponentuose bei leido įvertinti jų svarbą elektrinės atliekų sutvarkymo procese (Plukienė et al. 2018, Plukienė et al. 2020, Remeikis et al. 2021).

1.5. Radioanglis biotoje – aplinkos užterštumo indikatorius

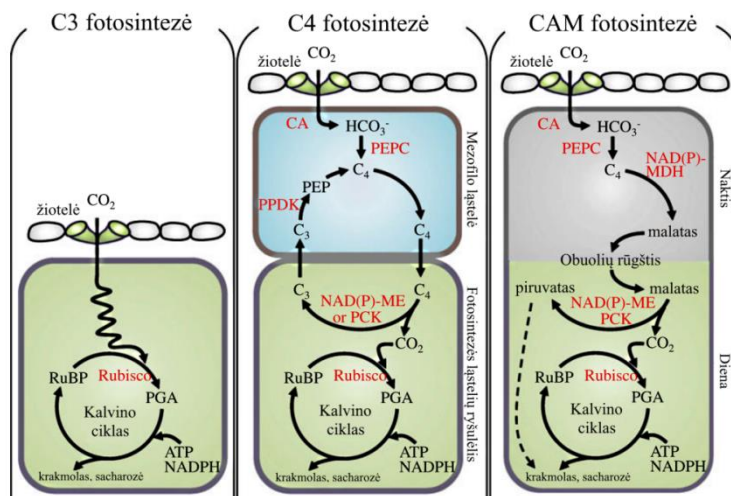
Susiformavęs ^{14}C anglies izotopas dažniausiai reaguoja su atmosferoje esančiu deguonimi ir sudaro $^{14}\text{CO}_2$ junginį, kuris yra įtraukiamas į globalų anglies ciklą. Šiame anglies cikle CO_2 dujos gali būti suvartotos autotrofinių organizmų fotosintezės procesų metu ar įtrauktos į fizinius procesus, tokius kaip ištirpimas vandenyje, garavimas, lyjimas, ar nuosėdų formavimas. Radioanglis būdama $^{14}\text{CO}_2$ junginyje dalyvauja tuose pačiuose fiziniuose, cheminiuose ir biologiniuose procesuose kaip ir $^{12/13}\text{CO}_2$, todėl yra neatskiriama nuo stabilų anglies izotopų pagal savo pagrindines chemines savybes (Key 2001). Absorbuota fotosintezės procesų metu, radioanglis yra inkorporuojama į gliukozės junginį, kuris sukauptas augaluose vėliau panaudojamas, kaip energijos rezervuaras formuoti celiuliozę. Biota stengiasi išlaikyti radioanglies koncentraciją savo audiniuose tokią pat kaip ir ją supančioje aplinkoje, todėl radioanglies koncentracijos pokyčiai atmosferoje yra aiškiai matomi biotoje. Kol augalai ir gyvūnai yra gyvi ir vykdo metabolizmo procesus, tol radioanglies kiekis jų organizmuose yra papildomas ir radioaktyvusis skilimas yra kompensuojamas. Organizmo mirties atveju, metaboliniai procesai sustoja ir radioanglies kiekis audiniuose pradeda mažėti dėl tebevykstančio ^{14}C radioaktyviojo skilimo. Atliekant $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ izotopinio santykio matavimus tokiuose audiniuose ar audinių likučiuose galima apskaičiuoti kiek laiko praėjo nuo tiriamojo objekto mirties momento arba kai jis buvo pašalintas iš aplinkos, kuri buvo praturtinta ^{14}C . Radioanglies datavimuose dažnai yra teigiama, kad tiriamasis objektas visada buvo uždaroje sistemoje, kuri neturėjo jokių papildomų radioanglies šaltinių, nuotėkių ir kitokių sąveikų su aplinka.

Dėl augalų biologinio radioanglies įsisavinimo iš atmosferos fotosintezės proceso metu, medžių rievėse esančios celiuliozės ^{14}C aktyvumo matavimai yra veiksminga priemonė aplinkos anglies izotopiniams pokyčiams tirti. Net itin maži aplinkos pokyčiai atsispindi medžio cheminėje sudėtyje ir turi įtakos jo vystymuisi ir augimui. Skirtinga aplinkos pokyčių informacija dažniausiai gaunama iš skirtingų medžių rūšių, jų augimo vietos, bei klimato sąlygų regione. Viena svarbiausių aplinkos pokyčių registravimo technikų, kuri remiasi natūraliais aplinkos procesais ir įvairių pokyčių

registravimu gamtoje, yra vadinama dendrologija (James H. Speer. 2009, Bannister 2021). Dendrologija apima ne tik natūralių aplinkos procesų analizę, bet ir žmonių sukurtą taršą. Kadangi medžiai augdami ir formuodami sluoksnius išsaugo informaciją apie aplinką, jie gali būti laikomi kaip unikalios laiko kapsulės, todėl gali būti naudojami, kaip aplinkos stebėjimo priemonė. Medžiuose netiesiogiai užfiksuota informacija gali būti naudojama nustatyti temperatūros, kritulių, gaisrų, vabzdžių, nuošliaužų, uraganų ir kitų procesų sukurtą įtaką, t. y. bet kokią tiesioginį ar netiesioginį aplinkos įtakos faktorių, kuris paveikė medžio augimą. Siekiant gauti patikimus rezultatus turi būti pasirinkta tinkamiausia medžių rūšis ir vieta, kur bandiniai bus renkami. Taip pat būtina įvertinti biologinius, fiziologinius ir biocheminius medžių augimo aspektus (Bradley 1999, 2000, James H. Speer. 2009, Harley and Grissino-Mayer 2012, Bannister 2021).

1.6. Radioanglis medžių rievėse

Natūraliai tarp trilijono ^{12}C anglies atomų galima rasti 1-1,5 ^{14}C atomą. Šis santykis esantis atmosferoje proporcingai atsispindi sausumos augaluose ir priklauso nuo to koku būdu augalas fiksuoja CO_2 fotosintezės proceso metu. Gamtoje esama trijų tokio tipo augalų: C_3 , C_4 ir CAM (5 pav.).



5 pav. C_3 , C_4 ir CAM augalų anglies įsisavinimo ciklai. Adaptuota pagal (Yamori et al. 2014).

Apie 85 % visų augalų rūšių anglį įsisavina C_3 augalams būdingu būdu. 10 % augalų sudaro CAM tipo augalai, o likusius 5 % C_4 augalai

(Way 2013). C_4 tipo augalai yra prisitaikę prie aukštos temperatūros ir sausros, o CAM augalai papildomai prisitaikę prie aukštų ir žemų temperatūrų svyravimo. Tokia adaptacija prie skirtingų aplinkos sąlygų lemia ir skirtingas fotosintezės charakteristikas. C_3 tipo augaluose, CO_2 dujos per žiotelę patenka į tarpląstelinį audinį, kur esama oro tarpų. Tokiu būdu CO_2 dujų molekulė pasiekia chloroplastą. Anglies anhidrazė katalizuoja grįžtamąjį CO_2 hidratacijos procesą į HCO_3^- , kur vandeninėje fazėje manoma ir vyksta CO_2 molekulių tiekimas Rubisko fermentui (Price et al. 1994). Chloroplaste Rubisko fermentas katalizuoja ribulozės-1,5-bifosfato (RuBP) karboksilinimą CO_2 pagalba ir pagamina 3-fosfoglicerino rūgštį (PGA). Fotosintetinių elektronų transportavimu tilakoidų membranose būdu pagaminti ATP ir NADPH naudojami cukrų ir krakmolo gamybai bei RuBP regeneracijai iš PGA Calvin-Benso cikle (Yamori et al. 2014).

Priešingai, C_4 tipo augalai turi atskirą biocheminį CO_2 molekulių koncentravimo mechanizmą, kuris sukaupia 10-100 kartų daugiau CO_2 ties katalizės centrais prie Rubisko fermentų lyginant su natūralia CO_2 koncentracija atmosferoje (Furbank and Hatch 1987, Jenkins et al. 1989). C_4 augaluose anglies anhidrazė CO_2 hidratuoja iki HCO_3^- naudojant fosfoenolpiruvato karboksilazę (PEPC), esančią citozolyje, kuri asimiliuojama į oksaloacetatą (OAA) fosfoenolpiruvato (PEP) substratais. PEP gaminamas iš piruvato ir ATP, kuriuos katalizuoja chloroplaste esanti piruvato fosfato dikinazė (PPDK). OAA yra redukuojamas iki malato arba, reakcija su alaninu metu transaminuojamas į aspartatą. Malatas arba aspartatas yra pernešamas ir galiausiai dekarboksilinamas, gaminant CO_2 ir piruvatą. Tada Rubisko cikle, CO_2 yra fiksuojamas chloroplastuose, kurie vykdo įprastą Kalvino ciklą, kaip ir C_3 augaluose (Yamori et al. 2014).

CAM augalų fotosintezėje taip pat vyksta biocheminis CO_2 molekulių koncentravimo mechanizmas, tačiau šio proceso metu atsiranda trumpalaikis C_3 ir C_4 komponentų atskyrimas. CAM augalų fotosintezė yra suskirstyta į keturias fazes paros metu:

1. Pirmosios fazės metu naktį vyksta CO_2 pasisavinimas per stomatas, CO_2 fiksacija tarpininkaujant PEPC fermentui, malatų sintezė NAD(P)-malato dehidrogenazės fermento pagalba citozolyje ir obuolių rūgšties kaupimasis mezofilo audinyje.
2. Antroji pereinamoji fazė, kurios metu paryčiais stomatos lieka atviros CO_2 pasisavinimui iš atmosferos.
3. Trečiosios fazės metu vyksta obuolių rūgšties dekarboksilinimas ir koncentruoto CO_2 refiksacija Rubisko fermento pagalba esant uždarytomis stomatomis.

4. Paskutinioji pereinamoji fazė, kurios metu sutemus atsiveria stomatos tolimesniam CO₂ pasisavinimui.

CAM augalai atverdami žioteles ir pasisavindami CO₂ iš aplinkos nakties metu ženkliai sumažina vandens nuostolius per atvertas žioteles ir pasiekia aukštą vandens naudojimo efektyvumą, kuris yra nuo 3 iki 6 kartų geresnis negu C₄ ir C₃ augalų (Nobel 1996, Yamori et al. 2014).

Fotosintezės proceso metu, sausumos augalai teikia pirmenybę lengvesniam anglies izotopui, tokiu būdu pasisavindami didesnį kiekį ¹²CO₂ palyginus su ¹³CO₂ ar ¹⁴CO₂. Žemėje aptinkamoje natūralioje anglyje ¹²C sudaro 98,89 %, ¹³C – 1,11 %, o ¹⁴C – 10⁻¹⁰ %. Šis fotosintezės teikiamas pirmumas lengvesniam anglies izotopui yra nulemtas skirtingos CO₂ molekulių difuzijos per augalų lapų stomatas ir Rubisko fermento dalyvaujančio fotosintezės procese karboksilinimo spartos. Dėl šių fotosintezės ypatumų sukuriamas 2 % skirtumas tarp ¹²CO₂ ir ¹³CO₂ fiksacijos spartos, kuris yra dar ryškesnis ¹⁴C izotopui. Šis procesas lemia, jog sausumos augalai turi mažesnius kiekius sunkesnių anglies izotopų tačiau izotopinis santykis išlieka proporcingas natūraliam atmosferos CO₂ (Still and Rastogi 2017).

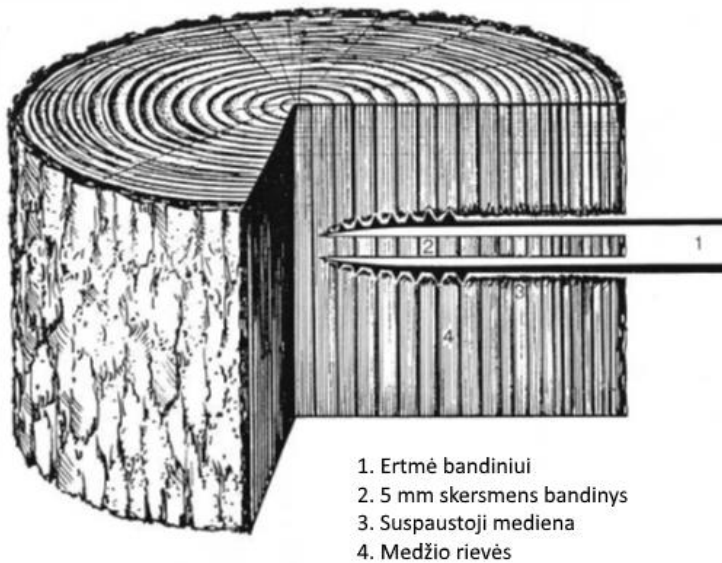
Kadangi ¹⁴C izotopo skilimo pusperiodis yra 5730 ± 30 metų, vykstant radioaktyviajam skilimui, mirusio ir jokių biologinių procesų nebevykdančio augalo sudėtyje esančios radioanglies kiekis eksponentiškai mažėja bėgant laikui (Taylor 1987). Tačiau likusių dviejų ¹²C ir ¹³C izotopų santykis nepakinta. Šis skirtumas buvo panaudotas įvairiose mokslo srityse tiriant ekosistemas ir jų anglies rezervuarus. Pritaikant šį anglies izotopinį pokytį dendrologijos mokslo srityje buvo atlikti anglies izotopinio santykio matavimai žinomo amžiaus medienos rievių bandiniuose. Tai leido išspręsti vieną iš svarbiausių uždavinių – sukalibruoti radioanglies amžiaus datavimą (Kutschera 2013).

1.7. Medienos bandinio paėmimas ir rievių skaičiavimas

Medžio rievės anglies izotopinė analizė reikalauja itin kruopščiai atskirti vieną medžio rievę nuo kitos, nes kiekvienai rievei būdingas unikalūs anglies izotopinis santykis. Gaubtasėklių medžių rievėje tiksliausias vienerių metų periodo anglies izotopinis santykis yra fiksuojamas vėlyvojoje medienoje. Ankstyvoji mediena taip pat yra tinkama tyrimams, bet joje esančios anglies izotopinis santykis yra praskiestas praėjusių metų gliukozės anglies izotopiniu santykiu. Norint atlikti cheminį bandinių valymą, optimaliai reikia 5 mg sausos medienos kiekio, todėl į minėtą skirtingų metų

izotopinį susimaišymą nėra kreipiamas didelis dėmesys, nes jis nėra žymus (James H. Speer. 2009, Xu et al. 2015).

Bandinių paėmimas (išgręžimas) iš medžio kamieno yra svarbi tyrimo dalis. Radioaktyviosios anglies datavimui skirtas bandinys (rievė) turėtų būti sukaupęs kuo daugiau medienos masės. Mėginys paimamas naudojant specialios konstrukcijos gręžimo karūną, kuri leidžia paimti viso ilgio, nuo pat žievės iki pat medžio šerdies besitęsiantį bandinį (6 pav.).



6 pav. Gražtu paimamo bandinio ir medžio skerspjūvis. Adaptuota pagal (James H. Speer. 2009).

Ištrauktas bandinys turi būti išdžiovintas ir toliau saugomas paprastomis sąlygomis, izoliavimas nuo aplinkos poveikio nėra būtinas (James H. Speer. 2009).

Medžio rievių skaičiavimo kryptis – nuo žievės į šerdį. Itin svarbu atpažinti netikras rievės, kurios atsiranda dėl įvairių aplinkos sąlygų pokyčio ir priverčia medį užmigti. Toks procesas suformuoja vėlyvosios medienos sluoksnį, kuris nėra tų metų pabaigos ženklas. Augimo sąlygoms pagerėjus, medis „pabunda“ ir ant tokios netikros rievės pradeda formuoti ankstyvąją medieną, kuri sukuria naujų metų rievę. Ši rievė gali būti klaidingai traktuojama kaip atskirų metų rievė (James H. Speer. 2009). Tokioms situacijoms išvengti yra pasitelkiami dendrochronologiniai rievių analizės

metodai, leidžiantys lengviau atskirti netikras rieves drauge analizuojant ir lyginant viso regiono sveikų medžių rėvių sekas.

1.8. Radioanglis vandens telkinių nuosėdose

Klimato kaitos keliama iššūkiu ir poveikis mus supančiai aplinkai bei nemažėjantis žmonių veiklos poveikis sukūrė stiprų poreikį mokslininkams kurti įrankius ir metodus, skirtus aplinkos pokyčių praeityje ir dabartyje stebėjimui bei prognozavimui ateityje. Tik tikslus praeities įvykių, reiškinių ar kitokių procesų ir jų sukeltų padarinių žinojimas bei supratimas gali padėti tiksliai numatyti ir prognozuoti dabar mus supančioje aplinkoje vykstančių procesų esamus ir būsimus padarinius. Esami instrumentiniai meteorologinių parametrų duomenys rodo klimato svyravimus praeityje, tačiau šie matavimų duomenys yra iš netolimos praeities ir tesiekia tik porą šimtų metų aktyvių stebėjimų. Todėl, norint sužinoti tūkstančių metų klimato kaitos istoriją, reikia ypatingai tikslų duomenų geografiniu ir laiko požiūriu (Bradley 1999). Paprasčiausi tam tinkami duomenys yra rašytinės istorijos archyvai apie orų reiškinius, derliaus praradimus ar potvynius ir kt., tačiau šie duomenys yra sąlyginai fragmentiški ir itin priklauso nuo juos įamžinusio asmens subjektyvaus mąstymo. Atsižvelgiant į šiuos trūkumus ilgametė atmosferos reiškinių rekonstrukcija remiasi netiesiogine informacija iš natūralių šaltinių. Žemynuose esančių vandens telkinių nuosėdų sluoksniai yra puikūs šios informacijos archyvai. Pavyzdžiui, ežero dugno sedimentacijai poveikį turi temperatūra, krituliai, vulkaniniai procesai, saulės aktyvumas, biomasės deginimas ar kitokia natūrali ar žmogaus sukurta tarša (Zolitschka et al. 2000, Brauer et al. 2007b, 2007a, Shanahan et al. 2008, Ramsey et al. 2012b, Melles et al. 2012, Neugebauer et al. 2014, Stockhecke et al. 2014). Drauge šie susikaupusių nuosėdų sluoksniai atspindi paleoklimatologijos sąlygas ir gali būti analizuojami pasitelkiant sedimentologines, geochemines, geofizines ir biologines metodikas, kurios apibendrinamos kaip paleolimnologija ar limnogeologija (Berglund 1986, Last and Smol 2001, Cohen 2003). Kadangi nuosėdų formavimasis įprastai yra lemiamas atmosferinių procesų ir geologinių reiškinių, nuosėdų fizinė analizė gali būti naudojama kaip atmosferinių reiškinių ir parametrų indikatorius, taip pat nustatant žmonių sukeltą poveikį ežero ekosistemai bei apylinkių vandens baseinui. Įvairių medžiagų transportavimas iš ežero baseino į patį ežerą priklauso nuo hidrologinių klimato sąlygų. Klimatas ir geologija drauge kontroliuoja dirvožemio ir floros susidarymą baseine ir priklausomai nuo to ar vanduo prateka pro ežerą ar ne, turi ryškų poveikį vandens cheminiam

procesams ir planktonui (Wetzel 2001). Kadangi geologija per visą lakrustinių baseinų gyvavimo laiką reikšmingai nesikeičia, ežeruose ir juose susidariusiose nuosėdose užfiksuojamos variacijos daugiausiai yra susijusios su klimato pokyčiais. Per pastaruosius 150 metų industrializuotose valstybėse buvo pastebėtas antropogeninis poveikis daugybėje ežerų ir jų hidrologinėje aplinkoje. Intensyvus žemės ūkis ir padidėjęs maistingųjų medžiagų nutekėjimas į ežerus gali sukelti ežero vandenyje deguonies trūkumą, kuris turi stiprų poveikį nuosėdų struktūrai ir sudėčiai (Wehrli et al. 1997).

Kiekvienas nuosėdų stulpelis atspindi paleoklimatologijos archyvą, kurio analizei yra būtinas kiekvieno sluoksnio amžiaus nustatymas. Skirtingai nuo medžių, kurie sezoniškai užaugina rieves, daugumoje ežerų nuosėdos gali būti be jokios akivaizdžios struktūros, kuri galėtų padėti atkurti sluoksnių vidinę chronologiją. Tačiau esama vandens telkinių, kur dėl tam tikrų sąlygų, lakrustinės nuosėdos gali kauptis sluoksniais, kurie atspindi sezoninį sedimentacijos ciklą, nulemtą sezoninių klimato pokyčių. Šios nuosėdinės medžiagos yra vertinamos kaip labai vertingi informacijos šaltiniai, galintys padėti atlikti kiekybinę paleoklimato rekonstrukciją (Larocque-Tobler et al. 2015), tirti ekosistemų atsaką į klimato kaitą (Randsalu-Wendrup et al. 2012), padėti įvertinti žmogaus įtaką planetai (Lotter and Birks 1997), nustatyti ugnikalnių išsiveržimų (Van Daele et al. 2014) ir potvynių pasikartojimo intervalus (Czymzik et al. 2013, Corella et al. 2014), įvertinti regionines stichijas, bei svarbiausia, atlikti detalų datavimą pagal kalendorinius metus (Nakagawa et al. 2012).

1.9. Ežero dugno nuosėdų formavimasis

Nuosėdų kaupimasis ežero dugne ir teršalų inkorporavimosi į nuosėdas procesas leidžia efektyviai ir tiksliai atkurti klimato taršos įvykius, neretais atvejais net visą taršos įvykių istoriją užterštuose vandens telkiniuose (Spliethoff and Hemond 1996). Ežero dugno nuosėdos susidaro dviem būdais: pačiame ežere (autochtoninis) arba už ežero ribų (alochtoninis). Alochtoninės nuosėdos gali būti sudarytos iš organinių medžiagų, bet kartu ir iš dumblo, molio, smėlio ir kitų neorganinių medžiagų, kurios gali būti išplautos arba supūstos į ežerą. Dažniausiu atveju, sedimentai nesikaupia pakrantėse, kur aktyvus bangų poveikis, sezoninis ledo susidarymas, gyvūnų kuriamas poveikis (bioturbacija). Didžiausi sedimentų sluoksniai yra aptinkami giliausioje ežero vietoje. Organinės kilmės sedimentai yra sudaryti iš augalų bei gyvūnų liekanų ir nepratekančio ar mažai pratekančio vandens ežeruose pasižymi sparčia sedimentacija.

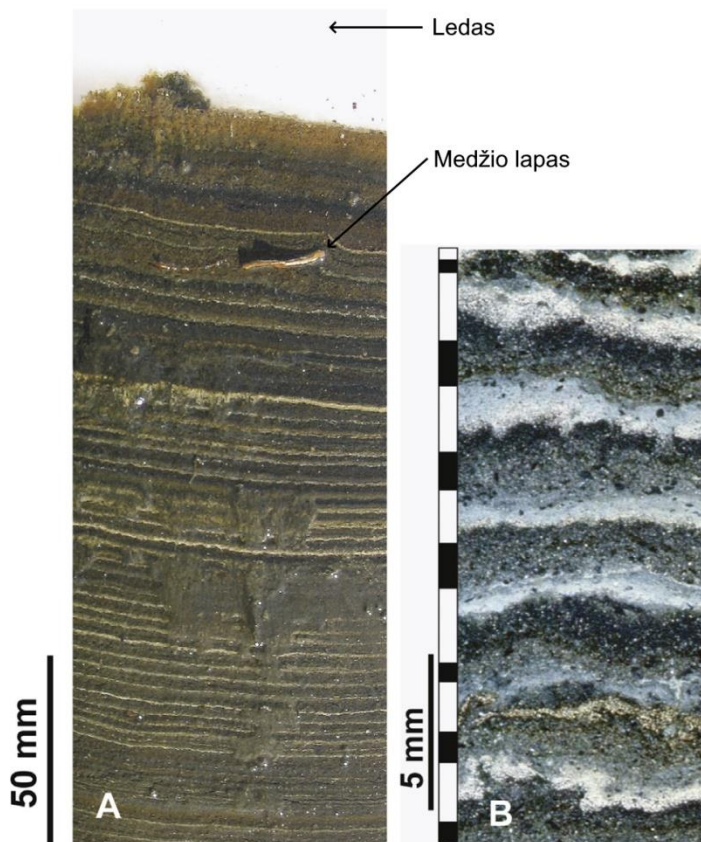
Esama pavyzdžių, kur organinių dugno nuosėdų sluoksnis per 8000 metų pasiekė 5 metrų storį (*Lake District*, Didžioji Britanija) (“Lake - Sediments and sedimentation | Britannica”, Rauch et al. 2006).

Varviniai ežerai turi daug panašumų su medžių rievėmis. Šis ežerų tipas pasižymi tuo, kad sedimentacija vyksta sluoksnis po sluoksnio bėgant laikui. Tokiu būdu susidaro unikalūs smulkių ir šiurkščių nuosėdų sluoksniai matomi 7 paveiksle.

Šie sluoksniai gali būti paveikti bioturbacijos, vandens srovių, gravitacijos. Bioturbacijos sukeltas sluoksnių susimaišymas yra pats svarbiausias. Tai gali sukelti smulkios žuvys, moliuskai, kirmėlės ar kita ežero fauna. Gilesniuose ežeruose šis procesas yra rečiau pastebimas, dėl mažesnio deguonies kiekio didesniuose gyliuose. Vandens srovės gali sukurti sluoksnių eroziją juos perkeldant į skirtingas ežero vietas, taip sukuriant didelio masto nuosėdų sumaišymą. Šis procesas dažniausiai pastebimas negiliuose ežeruose, nes srovių susidarymui didelę įtaką turi vėjas, todėl sedimentų sluoksnių ėimimui dažniausiai yra parenkami gilesni ežerai. Tačiau sedimentų maišymąsi gali paskatinti gravitacija. Ant statesnių šlaitų susikaupusios sedimentų nuosėdos gali nušliužti arba kitaip išsimaistyti, o vėliau vandens srovės gali dar labiau išsklaidyti sedimentus ežere. Abu maišymosi procesai yra paremti erozijos ir akumuliacijos naujoje vietovėje principu ir visada slenka į giliausią ežero vietą. Jeigu giliausias ežero taškas yra santykinai plokščias, sedimentų nuošliaužos sustoja dar iki pasiekdamos centrą. Tokiais atvejais sedimentų relokacija tampa nereikšminga arba lengvai atpažįstama (Larsen and MacDonald 1993, Sauerbrey et al. 2013).

Visuose varvinio tipo ežeruose susiformuoja bent keletas ar daugiau sezoninių nuosėdų sluoksnių, kurie pasižymi ryškia ir kontrastinga spalva, kompozicija, tekstūra, bei struktūra ir storiu. Sezoniškai nusėdančių sluoksnių seka atspindi pasikartojantį metinį ciklą, būdingą konkrečiai vietovei. Kasmetiniai nuosėdų formavimosi ciklai, paprastai, neatitinka kalendorinių metų, bet gali atspindėti hidrologinius metus, pavyzdžiui, klastinių nuosėdų formavimąsi nuo spalio iki rugsėjo. Skirtingi sluoksniai nebūtinai yra nuolatinio ir lėto dalelių kaupimo rezultatas. Dugno nuosėdų formavimosi procesai gali būti kontroliuojami ir sedimentacijos įvykių, susijusių su, pavyzdžiui, sniego tirpimu, gausiais krituliais, dumblo žydėjimu ar sparčiu kalkėjimu (Stockhecke et al. 2012). Atsižvelgiant į nuosėdų sluoksnių datavimo neapibrėžtumus, stochastinius pokyčius galima laikyti nereikšmingais, o terminas „kalendorinių metų chronologija“ paprastai yra paliekamas kaip validi atskaitos sistema. Skirtingų tipų nuosėdų sluoksnių

susidarymo ir su tuo susijusių klimato bei limnogeologinių sąlygų analizė plačiai pateikta B. Zolitschka (2015) straipsnyje (Zolitschka et al. 2015).

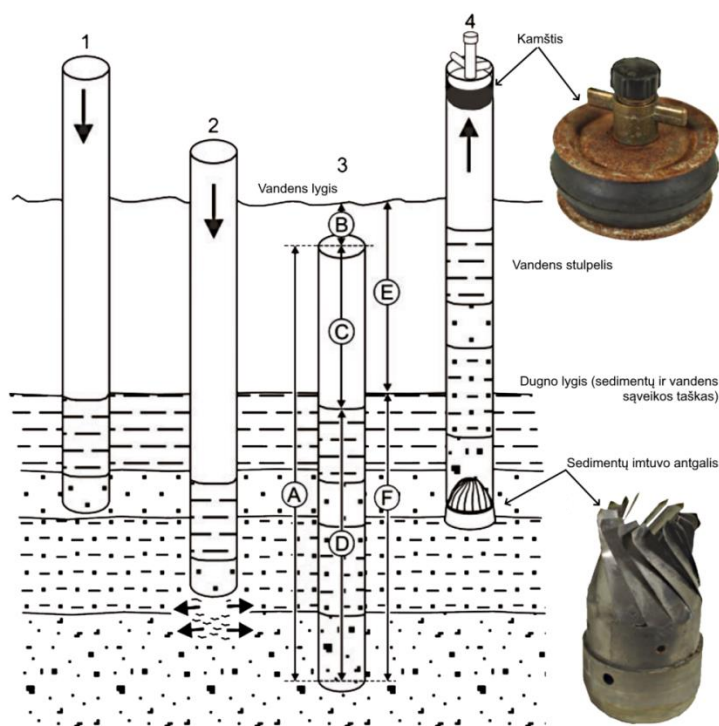


7 pav. Varvinio ežero dugno nuosėdų skerspjūvis. Adaptuota pagal (Zolitschka et al. 2015).

1.10. Vandens telkinio sedimentų bandinio paėmimas

Norint gauti pilnavertę ir kokybišką sedimentinių įrašų istoriją apie ežerą, reikia paimti nesutrikdytą ir nesudrumstą nuosėdinių sluoksnių kerną iš numatytos vietovės giliausioje ežero vietoje. Kai kuriuose tyrimuose yra svarbu atskirti paskutinį susiformavusį ar dar besiformuojantį nuosėdų sluoksnį. To siekiant, paimto bandinio terpė tarp nuosėdų ir vandens turi nesusimaišyti, o šiai užduočiai įvykdyti galima panaudoti užšaldančią bandinių ėmimo sistemą (Kulbe and Niederreiter 2003, Renberg and Hansson 2010) arba dėžės formos nuosėdų pjautuvą, kuris nesudrumsdamas išpjauna didelį bloką vandeningų nuosėdų (Schimmelmann et al. 1990). Jeigu nėra keliama itin aukšti reikalavimai bandinio kokybei, galima naudoti cilindro formos gravitacija paremtą sedimentų išpjovimo įrankį (8 pav.)

(Kelts et al. 1986) arba specialaus dizaino cilindrą su įkalimo mechanizmu (Renberg and Hansson 2011). Esant poreikiui išgauti bandinius iš gilesnių vietų, dažnai yra pritaikomi vibraciniai, didelės masės ar skirtingų dizainų įkalamieji cilindrai (Lotter et al. 1997, Mingram et al. 2007). Įsmingančio nuo sunkio jėgos ar įkalamo cilindro bandinių rinkimo sistemos yra praktiškiausios ir patogiausios siekiant surinkti nesudrumstų nuosėdų kerną (Moore et al. 2001, Snowball and Sandgrena 2002) bei, dažnu atveju, yra tinkamos išpjauti bandinį iš žvyruotų ar molingų vietovių. Taipogi šios bandinių rinkimo sistemos yra taikomos sausumos ir pelkėtose vietovėse, papildomai primontuojant ašmenis, kurių pakanka perpjauti medienos ir durpių sedimentus (Wright et al. 1984, Mingram et al. 2007).



8 pav. Sedimentų bandinio paėmimo principas: (1) cilindro įsmigimas į sedimentų sluoksnius; (2) nepavykęs bandinio paėmimas įstrigus cilindrai; (3) iki numatyto gylio įsmigęs cilindras; (4) sedimentų kerno sėkminga ekstrakcija. Adaptuota pagal (Kaarina Weckström et al. 2017).

Naudojant daugumą iš šių sistemų galima išgauti iki 12 m ilgio sedimentų kerną. Kai kurios sistemos yra segmentuotos po 1 m ilgio vamzdelius, kuriuos atskyrus nuo sistemos susidaro sedimentų sluoksnių

lūžiai sujungimo vietose. Siekiant to išvengti, dažnai yra imami keli bandinių kernai, lygiagrečioje vietoje, su tam tikru ėminio gylio skirtumu. Toks metodas leidžia padengti lūžusias sritis, ženkliai pagerinti sedimentų sluoksnių tyrimo rezoliuciją ir surinkti papildomą kiekį nuosėdų medžiagos kitiems tyrimams.

1.11. Sedimentų radiometriniai matavimai

Sedimentų amžiaus nustatymas gali būti atliekamas trimis būdais - tiriant organiką ir joje esantį ^{14}C kiekį arba neorganines medžiagas, tokias kaip kalcio karbonatą, nustatant $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ bei $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ santykį. $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ santykio matavimai yra taikomi iki 350 000 metų, o $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ santykio matavimai – iki 150 000 metų amžiaus datavimams atlikti. ^{137}Cs izotopas yra antropogeninės kilmės teršalas išleistas iš branduolinės pramonės objektų, bei branduolinių ginklų testavimų metu ir gali pasitarnauti paskutinių 50 metų amžiaus datavime, o natūralūs ^{210}Pb ir ^{14}C radioizotopai gali būti naudojami, atitinkamai, pastarųjų 150 ir 50 000 metų amžiaus datavimuose. Ežero dugno nuosėdų datavimas, kur nėra stebimas sezoninis sedimentų formavimasis, visiškai priklauso nuo radiometrinio amžiaus datavimo suteikiamos informacijos, tačiau radiometrinis amžiaus datavimas dažnai taikomas siekiant patvirtinti ar patikslinti ežero dugno nuosėdų sluoksnių metinį amžių. Todėl dažniausiai yra tiriamos organinės medžiagos surinktos iš ežero dugno nuosėdų, kur pagrindinė tiriama medžiaga yra radioanglis (Ojala et al. 2012).

Kaip žinoma, anglis sedimentuose būna organinės arba neorganinės kilmės, ir gali būti vietinės kilmės arba atnešta į vandens telkinį kitais būdais. Alochtoninės kilmės medžiagos yra susidariusios už vandens telkinio ribų ir savo sudėtyje gali turėti įvairiausias kilmės ir izotopinio santykio anglies. Tuo tarpu autochtoninės kilmės organika atspindi ežero augalų, fitoplanktono ar makrofitų fiksuotos ištirpusios neorganinės anglies (DIC) izotopinį santykį. Taip pat reikia nepamiršti, kad ežero paviršinis vanduo yra prisotintas atmosferiniu CO_2 , kurio sudėtyje esantis $^{14/12}\text{C}$ santykis yra balanse su atmosfera, todėl yra pasiekama dinaminė pusiausvyra tarp DIC ir atmosferos $^{14}\text{CO}_2$. Didelę dalį organinių sedimentų sudaro huminės medžiagos, kurios yra sudarytos iš didelės molekulinės masės junginių ir dalyvauja geocheminiuose procesuose susidarant ežero dugno nuosėdoms (Aiken et al. 1985, Kleber and Lehmann 2019).

Mikroorganizmai ir bakterijos nuolat ardo ir perdirba vandenyje ir sedimentuose esančias organines medžiagas, todėl jų vykdomi procesai turi įtaką skirtingų frakcijų susidarymui – huminui ir humino rūgščiai. Didesnės

organinės molekulės yra skaidomos į mažesnius junginius, tokius kaip karboksirūgštis, bikarbonatus ar CO₂, esant didesniai polinių ir jonizuojančių funkcinų grupių kiekiui. Tuo tarpu mažesnės molekulinės masės molekulės jungiasi į stabilesnių ir labiau inertiškų darinių struktūrą (Lehmann and Kleber 2015). Buvo nustatyta, kad susiformuojant sunkesnėms humino frakcijoms, jų struktūroje daugėja kondensuotų aromatinių žiedų (Kleber and Lehmann 2019). Humino rūgštys yra sudarytos iš sferinių molekulių, kurias sudaro heterogeninės dalys tarpusavyje sujungtos skirtingais kovalentiniais ryšiais (Kleber and Lehmann 2019). Humino rūgštys yra tirpios šarminiuose tirpaluose ir savo struktūroje turi hidrofobinių ir hidrofilinių grupių (Schellekens et al. 2017). Būtent dėl šios priežasties humino rūgštys gali prisijungti tiek organinius junginius, tiek neorganinius jonus (Kerndorff and Schnitzer 1980, Schellekens et al. 2017).

Kadangi sezoniškai besiformuojančios ežero dugno nuosėdos savo struktūra yra labai panašios į medžių rieves ir ne retu atveju savo sudėtyje turi sausumos augalų mikrofosilijų tinkamų radioanglies amžiaus nustatymo tyrimams, sedimentai tapo itin vertingi informacijos archyvai galintys padėti rekonstruoti sausumos $\Delta^{14}\text{C}$ istoriją.

1.12. Cheminis medienos ėminių paruošimas ^{14}C matavimams

Norint atlikti tikslų ^{14}C amžiaus datavimą, svarbu paimti tik tą bandinio dalį, kurioje tiriamojo izotopo santykis nebūtų pakitęs nuo medžio mirties momento iki matavimo. Pagrindinė medienos sudedamoji dalis yra celiuliozė, kurios kiekis svyruoja nuo 40 % iki 60 %. Likusią medienos dalį sudaro ligninas (16 – 33 %), hemiceliuliozė ir kitos lengvai pašalinamos medžiagos, pavyzdžiui, derva, vaškas ir kt. Ligninas ir hemiceliuliozė turi būti pašalinti atliekant medienos cheminį paruošimą, nes laikui bėgant šios medžiagos kinta (Leavitt and Danzer 1993, Brendel et al. 2000, Walker 2006, Němec et al. 2010b). Standartinis medienos cheminis apdorojimas, prieš atliekant radioanglies tyrimus, pagrįstas lengvai kintančių medžiagų pašalinimu iš bandinio, taikant rūgštis-šarmas-rūgštis (angl. *Acid-Base-Acid ABA*) metodiką (Němec et al. 2010b).

Siekiant išgauti celiuliozę iš medienos ir ją išgryninti, pirmiausia reikia suardyti lignino struktūrą, kuri yra kaip tarpinė, užpildančioji medienos medžiaga. Standartinis ABA metodas suardo ir pašalina lengvai tirpstančius medienos komponentus. Tačiau stabiliausia medienos dalis α -celiuliozė yra išgaunama iš holoceliuliozės, bandinį tirpinant šarme ir rūgštyje bei balinant natrio chlorito tirpale. α -celiuliozė yra netirpi net 17,5 proc. NaOH tirpale. Paprastai, norint iš bandinio pašalinti visas

priemaišas, apdorojimo šarmu ir rūgštimi nepakanka, todėl Georgas Jayme'as, Louisas Elsbergas Wise'as ir Oliveris Brendelis sukūrė ir patobulino medžių bandinių paruošimo metodus, kurie dabar yra plačiai taikomi (Brendel et al. 2000, Gaudinski et al. 2005).

Kiekviena celiuliozės grupė natrio hidroksido tirpale išskyrimo metu yra nevienodai tirpi, todėl jas įmanoma atskirti atliekant cheminį bandinio apdorojimą. Alfa celiuliozė yra netirpi net ir stipriame natrio hidroksido tirpale (17,5 proc. NaOH). Beta celiuliozė yra tirpi minėtos koncentracijos NaOH tirpale, tačiau po neutralizacijos susidaro nuosėdos. Gama celiuliozė ištirpsta visiškai ir lieka tirpale. Hemiceliuliozė yra kitos rūšies medienos produktas, sudarytas iš polisacharidų, kurie dengia celiuliozės sienelę (James H. Speer. 2009, J.Ragauskas 2013).

Šarmas-rūgštis-šarmas-rūgštis-balinimas (angl. *Base-Acid-Base-Acid-Bleaching* – BABAB) metodas yra modifikuota plačiai taikomo ABA metodo, papildyto balinimo žingsniu, versija (Gaudinski et al. 2005). Yra du pagrindiniai skirtumai tarp BABAB ir ABA metodų: visų pirma, taikant BABAB metodą bandinys paveikiamas šarmu, tai reiškia, kad visos didesniame pH tirpios medžiagos bus pašalintos iš bandinio. Taip iš bandinio yra pašalinami alkoholiai, fenoliai ir karboksilo grupės. Siekiant didesnio cheminės reakcijos efektyvumo, bandinius galima kaitinti iki 75 °C. Tokioje temperatūroje bandinius užtenka palikti iki 12 valandų.

Antra, po ABA proceso atliekama papildoma balinimo procedūra. Natrio chloritas yra plačiai naudojamas įvairioms medžiagoms balinti. Dažnai į natrio chlorito tirpalą, norint gauti mažesnę tirpalo pH, t. y. tarp 3 ir 5, yra pridama acto rūgšties. Tokio pH tirpale chlorito oksidacija vyksta efektyviausiai. Tačiau Mojmiras Nemecas ir kt. (Němec et al. 2010b) vietoje acto rūgšties naudoja druskos rūgštį, siekiant išvengti bet kokių acetilavimo reakcijų.

1.13. Cheminis ežero dugno nuosėdų ėminių paruošimas ¹⁴C matavimams

Siekiant ištirti ¹⁴C savitąjį aktyvumą ežero dugno nuosėdose, ¹⁴C matavimams atlikti yra pasirenkamos dugno nuosėdas sudarančios humino frakcijos. Huminės medžiagos yra nevienalytis natūraliai susidarančių organinių medžiagų mišinys. Šios medžiagos yra paplitusios mūsų aplinkoje ir atsiranda dėl augalų ir gyvūnų liekanų irimo bei negali būti klasifikuojamos į atskiras kategorijas, tokias kaip baltymai, polisacharidai ar polinukleotidai. Huminės medžiagos, paprastai, skirstomos į humino rūgštį, fulvo rūgštį ir huminą, atsižvelgiant į jų tirpumą vandenyje, kaip pH

funkciją. Šios humusinės medžiagos frakcijos yra apibrėžiamos (Aiken et al. 1985, MacCarthy et al. 2015) taip:

- Humino rūgštis – huminių medžiagų frakcija, kuri yra netirpi rūgštinėje terpėje ($\text{pH} < 2$), bet priešingai yra tirpi šarminiuose tirpaluose.
- Fulvo rūgštis – huminių medžiagų frakcija, kuri tirpsta vandenyje visomis pH sąlygomis.
- Huminas (HM) – huminių medžiagų frakcija, netirpi vandenyje esant bet kokiai pH vertei.

Apibrėžimai tiesiogiai nurodo įvairių frakcijų atskyrimo nuo substrato metodus.

Pagrindinės huminių medžiagų funkcinės grupės yra karboksilai, alkoholiai, fenoliai hidroksilai ir karboniliai. Huminių medžiagų funkcinų grupių nustatymo metodai nėra patikimi, tačiau elementinė analizė tiksliai apibūna huminių medžiagų sudėtį. Dažnai 100 % HM sudėties sudaro anglis, vandenilis, deguonis, azotas, fosforas bei siera. Dėl itin sudėtingos HM cheminės sudėties, kiekvienas tiriamasis elementas turi būti matuojamas atskirai (MacCarthy et al. 2015). Humino ir fulvo rūgšties elementinė kompozicija yra pateikta 2 lentelėje.

2 lentelė. Sausų sedimentų humino ir fulvo rūgšties vidutinė elementinė sudėtis (Steelink 1985).

Elementas	Humino rūgštis	Fulvo rūgštis
	Kiekis (%)	
Anglis	53,8 - 58,7	40,7 - 50,6
Vandenilis	3,2 - 6,2	3,8 - 7,0
Deguonis	32,8 - 38,3	39,7 - 49,8
Azotas	0,8 - 4,3	0,9 - 3,3
Siera	0,1 - 1,5	0,1 - 3,6

Siekiant išskirti elementinius komponentus iš ežero dugno nuosėdų, pasitelkiama ekstrakcija šarmu. Humino rūgščių sudėtyje esančios ir deguonies turinčios funkcinės grupės yra jonizuojamos terpėje, kurios $\text{pH} > 13$, todėl žymiai padidėja jų tirpumas vandeniniuose tirpaluose. Huminas yra nei šarminiuose, nei rūgštiniuose tirpaluose netirpi frakcija. HM sudarančios molekulės neturi jonizuojamų funkcinų grupių arba šios grupės yra mineralų apsaugotos nuo šarmo poveikio.

1.14. Grafitizavimo sistema AGE3

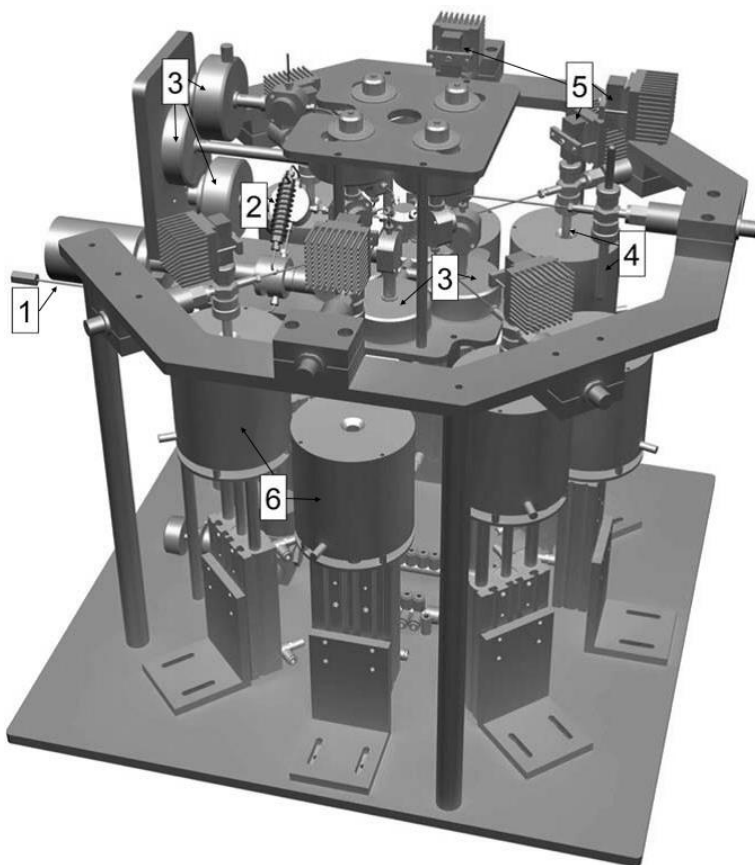
Kitas svarbus žingsnis – CO₂ dujų išskyrimas iš bandinio medžiagos ir suketinimas. Tai vienas iš svarbiausių bandinių paruošimo etapų, nes grafitizacijos metu yra išgryninamos CO₂ dujos nuo visų kitų degimo produktų ir suketinamos iki grafito tinkamo vienos pakopos greitintuvo masių spektrometro matavimams (SSAMS – *angl. Single Stage Accelerator Mass Spectrometer*) atlikti.

Grafitizacijos reakcijos pradėtos tirti jau nuo septintojo dešimtmečio antros pusės tuo metu dar neturėdamos jokios sąsajos su AMS technologija (Manning and Reid 1977, Sacco and Reid 1979, Sacco et al. 1984). Tik po beveik dešimtmečio šios reakcijos buvo pritaikytos AMS (Vogel et al. 1984, 1987b) ir nuo to laiko tapo dažniausiai taikomos AMS katodų paruošime. CO₂ dujų redukavimas vandenilio dujomis su geležies, nikelio ar kobalto katalizatoriais buvo praktiškiausios grafitizavimo medžiagos, tačiau kokybiškų grafito bandinių gamybai buvo pasitelktos ir kitos redukuojančios medžiagos, tokios kaip Mn, Zn arba TiH (Jull et al. 1986, Vogel et al. 1987a, Slota et al. 1987, Vogel 1992, Verkouteren et al. 1997, Xu et al. 2007).

Sistemos, kai bandinys yra sudeginamas, o vėliau susidariusios CO₂ dujos grafitizuojamos katalizuojant geležimi H₂ dujų aplinkoje (Vogel et al. 1984), yra plačiai naudojamos ruošiant grafito taikinius radioanglies matavimams greitintuvo masių spektrometru. Tačiau visose senesnio modelio sistemose CO₂ dujoms perkelti iš elementinio analizatoriaus į grafitizavimo reaktorių buvo naudojama kriogeninė gaudyklė užpildyta skystu azotu (Gagnon et al. 2000, Aerts-Bijma et al. 2001, Hajdas et al. 2004, Yoneda et al. 2004). 1966 m. Hansas Oeschgeris ir kt. (Oeschger et al. 1966), norėdami sugaudyti CO₂ dujas, panaudojo molekulinis sietus (ceolitus). Nuo tada molekuliniai sietai buvo pradėti naudoti CO₂ dujų surinkimui iš nešančiųjų dujų (Bol and Harkness 1995, Hardie et al. 2005, Billett et al. 2006), bet niekada nebuvo laikomi alternatyva grafitizavimo sistemose. 2010 m. Lukas Wackeris ir kt. pristatė supaprastintą grafitizavimo procedūrą ir patį prietaisą – grafitizavimo sistemą AGE1, kurioje skystas azotas pakeistas ceolitu (Gagnon et al. 2000, Wacker et al. 2010).

Automatizuota grafitizavimo sistema AGE3 – tai bandinių paruošimo sistema. Ji skirta greitai ir kokybiškai paruošti grafito bandinius, kurie būtų tinkami greitintuvo masių spektrometro jonų šaltinio katodų gamybai. Įrangą sudaro elementinis analizatorius (*angl. Elemental Analyser – EA*) ir

grafitizatorius (Wacker et al. 2010). Grafitizavimo sistemos pavyzdys pateiktas 9 pav.



9 pav. Grafitizavimo sistema AGE – 1, 1 – EA dujų įvedimo sklendė, 2 – molekulinė gaudyklė, 3 – vožtuvai, 4 – reaktoriai, 5 – Peltier aušintuvai, 6 – krosnelės. Adaptuota pagal (Wacker et al. 2010).

1.15. ^{14}C izotopo masių spektrometrija

Pirmasis metodas, kuriuo buvo detektuoti ^{14}C atomai, buvo detektuojant ^{14}C beta skilimą (Anderson et al. 1947). Scintiliaciniam tyrimo metodui reikėjo 1 g anglies bandinio ir tai buvo sudėtinga užduotis daugeliui archeologų ir kitų sričių mokslininkams, todėl ^{14}C tyrimų galimybės sparčiai vystėsi. 1977 metais net dvi nepriklausomos laboratorijos, naudodamos tandeminį van de Graaff greitintuvą, natūraliose medžiagose aptiko radioanglį (Fifield 1999).

Greitintuvo masių spektrometrija (angl. *Accelerator Mass Spectrometry*) – vienas jautriausių metodų, skirtų matuoti įvairių skilimo pusperiodžių radionuklidų santykius tiriamojoje medžiagoje (Kutschera

2013). 1977 m. išrastas AMS veikimo principas puikiai tiko ^{14}C izotopo paieškom, nes anglies junginiai efektyviai virsta neigiamo krūvio jonais, o interferencinio ^{14}N izotopo neigiamo krūvio jonai yra nestabilūs (Purser et al. 1977). Daugelis AMS sistemų taiko tandeminį greitavimo metodą, nes jis puikiai tinka ^{14}C matavimams, be to, nemažai įvairių medžiagų jonų gali būti išskirti tuo pačiu metodu naudojant cezio jonų šaltinį (Middleton 1984). AMS technologija leido sumažinti radioanglies tyrimui reikalingos anglies kiekį tūkstantį kartų. Netrukus AMS tyrimų sritys buvo praplėstos, pradėti nustatinėti kiti ilgo skilimo pusperiodžio radionuklidai, pavyzdžiui, ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca ir ^{129}I (Fifield 1999, Kutschera 2013, Synal 2013).

AMS technologija leido kompensuoti radioanglies tyrimų metodų trūkumus. Viename grame moderniosios anglies yra $6 \cdot 10^{10}$ ^{14}C atomų. Minėtame medžiagos kiekyje per minutę vidutiniškai suskyla 14 ^{14}C atomų. Norint pasiekti 0,5 proc. statistinį tikslumą skaičiuojant skilimo įvykius, matavimo trukmė turi būti apie 48 val. Taikant AMS tyrimo metodiką, analogišką statistinį tikslumą, naudojant 1 mg grafito bandinį, galima pasiekti per 10 minučių (Fifield 1999).

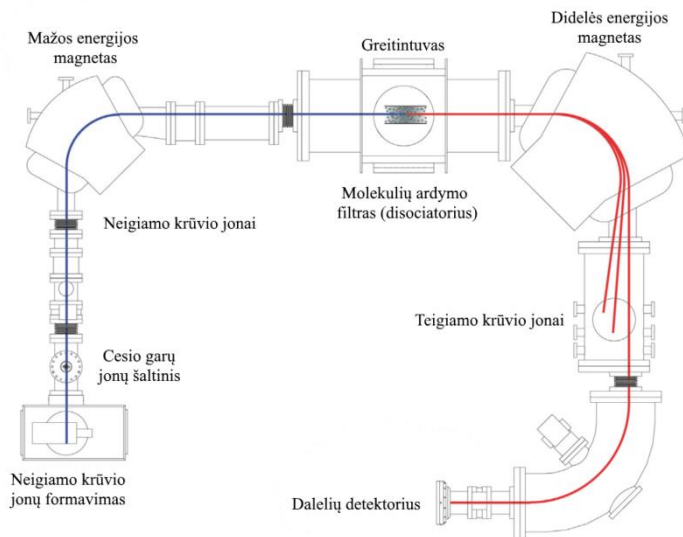
Nors nuo 1977 m., kai buvo sukurta AMS įrenginių technologija, AMS spektrometrų veikimo principas nepasikeitė, tačiau jų analitinės galimybės ir matavimo technika labai patobulėjo. Didelis AMS tikslumas pasiekiamas taikant keturis jonų filtravimo etapus, kuomet pašalinami visi interferencijos šaltiniai, galintys iškraipyti atskiro jono sukurtą signalą detektoriuje. Kiekvienas filtras turi užtikrinti maksimalų retojo elemento perdavimo srautą, efektyviai užkirsti kelią kitoms medžiagoms, kartu palaikant filtravimo stabilumą.

Standartinį greitintuvo masių spektrometrą sudaro šie komponentai (prietaiso schema pateikta 10 pav.) (Fifield 1999, Synal 2013):

- jonų šaltinis;
- jonų pluošto valdymo sistema;
- greitintuvas ir molekulių disociatorius;
- didelės energijos masių analizatorius;
- detektorius.

Jonų šaltinis. Matuojant izotopinį medžiagos santykį, kai ieškomo izotopo kiekis siekia 1 ppt ar mažiau, turi būti užtikrintas pakankamo intensyvumo jonų srautas. Šiuo metu beveik visi AMS įrenginiai yra aprūpinti cezio jonų šaltiniais. Cezio jonų šaltiniai pasižymi aukšto efektyvumo neigiamų jonų gamyba iš bandinio medžiagos, jonų srauto stabilumu, mažu atminties efektu ir trumpa katodų keitimo trukme. Šio tipo jonų šaltiniai tinkamiausi jonų gamybai iš kietos būsenos bandinių

medžiagos. Jonų šaltinyje dalis cezio garų, kad būtų sukurtas teigiamas cezio jonų pluoštelis, sufokusuotas į bandinio paviršių, jonizuojami tantalo paviršiuje. Išmušti iš bandinio paviršiaus atomai patenka į cezio garus, kur, prisijungę papildomus elektronus, patenka į elektrostatinį jonų atskyrimo segmentą. Atskyrimo segmente jonai, prieš jiems patenkant į masių analizatorių, yra pagreitinami iki numatytos energijos.



10 pav. Standartinis masių spektrometras su greitinimo pakopa. Adaptuota pagal (Synal 2013).

Jonų pluošto įvedimo sistema. Daugelyje AMS yra integruota speciali jonų valdymo ir įgreitinimo sistema, kontroliuojanti visų trijų anglies izotopų patekimą į masių spektrometrą. Jonus į MS galima įvesti keliais būdais. Vienas jų – skirtingų masių jonus įvesti skirtingu laiku, keičiant jonų energiją arba keičiant magnetinį lauką mažos energijos masių analizatoriuje. Jonų energiją galima pakeisti greičiau negu magnetinį lauką magnetu – tai šio MS dizaino pranašumas, leidžiantis didesniu dažniu kontroliuoti jonų pluoštą. Toks impulsinis režimas pasiekiamas sukuriant individualiai jonus greitančią įtampą, pirminio greitinimo pakopoje – ekstraktoriuje. Daugelis AMS laboratorijų, norėdamos sumažinti triukšmų efektus jonų šaltinio išėjimo vietoje ir siekdamos palaikyti stabilų greitinimo pakopos darbą, taiko impulsinį režimą. Įvedimo sistemai į greitinimo pakopą nukreipus jonų srautą, sudarytą iš ^{12}C izotopo, gerokai išauga greitintuvo apkrova, kurios sistema nespėja kompensuoti. Todėl jonų įvedimo sistema užtikrina, kad didesnės srovės jonų pluoštas greitintuve būtų trumpai,

nesukurdamas perkrovos. Taip pat jonų įvedimo sistemos pabaigoje, prieš greitintuvą, naudojamas elektrostatinis lęšis, kuris sufokusuoja jonų pluoštą, kad šiam patekus į molekulių disociatorių, būtų patirti kuo mažesni nuostoliai (Fifield 1999).

Yra ir alternatyva impulsiniam režimui. Stabilūs ir radioaktyvūs izotopai į greitinio pakopą gali būti įleidžiami kartu, jų neišskiriant. Tokioje sistemoje naudojami dipoliniai magnetai ir elektrostatiniai lęšiai, kurie padeda išlaikyti stabilias jonų pluoštelių trajektorijas. Ši masių spektrometro dizainą pritaikė ir ištobulino McMaster universitetas (Southon et al. 1990).

Greitintuvas ir molekulių disociatorius. Šiuo metu AMS sistemose plačiausiai naudojami nuolatinės įtampos greitintuvai, kurie, atsižvelgiant į greitinio įtampą (V), gali būti skirstomi į tris grupes:

- $V < 3 \text{ MV}$;
- $4,5 < V < 9 \text{ MV}$;
- $V > 10 \text{ MV}$.

Reikalaujami kriterijai greitinio pakopoms – aukštas jonų pluošto transmisijos procentas ir atsikartojamumas, kuris apibūdina sistemos jautrumą mažiems pokyčiams jonų pluošto įvedimo sistemoje ir pačios greitinio pakopos parametrų pokytį. Didžiausios transmisijos vertės gaunamos greitinio pakopoje naudojant didelio diametro vakuumo kanalus, didesnio pločio ertmės tarp magnetų ir kaip įmanoma didesnes apertūras. Geriausia transmisija užtikrinama molekulių disociatorių naudojant aukštoje įtampoje. Daugelis radioanglies laboratorijų molekulių disociatoriuje naudoja argono dujas, taip užtikrindamos aukščiausią matavimo tikslumą. Molekulių disociatoriaus kanalo skersmuo siekia 8 mm ir tai dažniausiai būna siauriausia visos AMS sistemos sritis, kuri gali apriboti viso įrenginio darbą. Todėl didžiausias dėmesys skiriamas jonų lęšiams, kurie būtini siekiant užtikrinti mažiausius transmisijos praradimus. Sistemose, kuriose naudojama greitinio įtampa yra mažesnė negu 300 kV, dažniausiai nėra naudojamos tradicinių greitintuvų technologijos (Fifield 1999).

Neigiami jonai, paleisti iš įvedimo sistemos, praeina greitintuvą ir, pasiekę maksimalią energiją, yra įleidžiami į molekulių disociatorių. Molekulių disociatoriuje leidžiamos argono arba helio dujos, per kurias nukreipiamas įgreitintų jonų spindulys. Susidūrę su įpurkštomis dujomis jonai netenka elektronų ir pakeičia krūvį į teigiamą (Synal 2013). Molekulių disociatorius padeda suardyti neigiamai įelektrintas molekules į pavienius teigiamo krūvio jonus. Tai vyksta, kai pakankamai jonizuota molekulė tampa

nestabili ir suyra dėl Kulono jėgos. Įvairių panašios masės molekulių, kaip $^{12}\text{CH}_2$ ir ^{13}CH , suardymas yra svarbi molekulių disociatoriaus funkcija (Taylor 1992).

Didelės energijos masių analizatorius. Siekiant atskirti retąjį elementą nuo kitų, panaudojamas didelės energijos magnetinis filtras. Priklausomai nuo instrumento pritaikymo, siekiant vienareikšmiškai identifikuoti jonų masę, visada yra atliekama jonų judesio kiekio ir krūvio (p/q) bei jonų energijos ir krūvio (E/q) analizė (Synal 2013).

Detektorius. Paskutinis AMS sistemos komponentas skirtas identifikuoti atskirus jonus. Silicio puslaidininkiniai detektoriai, kaip ir jonizavimo kameros detektoriai, yra plačiai naudojami. Į detektorių patenkančios didelės energijos dalelės yra detektuojamos ir sukuria signalą, atitinkantį jų energiją (Synal 2013). Vienas iš didžiausių puslaidininkinių detektorių trūkumų yra jautrumas jonizuojančiajai spinduliuotei, kurios veikiamas detektorius dėvisi ir laikui bėgant praranda savo fizines savybes (Fifield 1999).

1.16. Modernios anglies įvertinimas

Pagrindinė informacija, reikalinga ^{14}C aktyvumo matavimams atlikti, yra išmatuoti bandinio ir etaloninės medžiagos savitąjį aktyvumą bei nustatyti sistemos foninį lygį. Savitasis aktyvumas yra lygus skilimų skaičiui per tam tikrą laiko tarpą masės vienetu ir gali būti išreikštas, pavyzdžiui, skilimais per sekundę grame anglies arba bekereliais kilograme anglies (Bq/kg C). Sistemos foninio lygio nustatymas turi būti atliktas tokiais pat metodais kaip ir bandinio medžiagos, nes matavimo rezultatams gali daryti įtaką papildomas užteršimas radioanglimi iš aplinkos bei instrumento foninis lygis (Stenström et al. 2011).

Bandinio savitasis ^{14}C aktyvumas A_s yra išmatuoto savitojo aktyvumo bandinyje $\tilde{A}_s$ ir foninio aktyvumo $\tilde{A}_b$ funkcija (tas pats galioja ir etalono savitajam aktyvumui):

$$A_s = f_1(\tilde{A}_s, \tilde{A}_b) \quad (3)$$

$$A_{\text{etalonas}} = f_2(\tilde{A}_{\text{etalonas}}, \tilde{A}_b) \quad (4)$$

Paprastiau tai gali būti aprašyta taip:

$$A_s = \tilde{A}_s - \tilde{A}_b \quad (5)$$

$$A_{\text{etalonas}} = \tilde{A}_{\text{etalonas}} - \tilde{A}_b \quad (6)$$

Radioanglies koncentracija (savitasis aktyvumas) tiriamajame mėginyje yra vertinama pagal žinomo savitojo aktyvumo etaloninę medžiagą. Dėl radioaktyviojo skilimo ne tik bandinyje bet ir etaloninėje medžiagoje esančios ^{14}C kiekis bėgant laikui mažėja. Todėl buvo įvestas „absoliutus radioanglies etalonas“ (angl. *absolute radiocarbon standard - abs*). Šio absoliutaus etalono savitasis aktyvumas buvo apibrėžtas kaip:

$$A_{\text{abs}} = 226 \frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \text{C} \quad (7)$$

A_{abs} atspindi hipotetinį radioanglies savitojo aktyvumo lygį atmosferoje 1950 metais su prielaida, kad tuo metu atmosfera nebuvo sutrikdyta žmonių veiklos (Mook and van der Plicht 1999). A_{abs} gali būti išreikštas:

$$A_{\text{abs}} = A_{1950[-25]} e^{\lambda_c(y-1950)} \quad (8)$$

kur $A_{1950[-25]}$ nurodo savitąjį aktyvumą 1950 metais hipotetinėje atmosferoje, sunormalizuotą pagal $\delta^{13}\text{C} = -25\text{‰}$ ir suskilusį iki šiandienos. $A_{1950[-25]}$ dydis atitinka aktyvumą pamatuotą tam tikru metu, o tuo tarpu A_{abs} vertė atitinka aktyvumą, jeigu matavimas būtų atliktas 1950 metais. EkspONENTėje λ_c dydis yra pagrįstas Kembridžo pusėjimo trukme, kuri lygi $T_{1/2} = 5730 \pm 40$ metų. Kintamasis y atitinka atlikto matavimo datą.

Etaloninės medžiagos savitasis aktyvumas yra apibrėžiamas normalizuota išraiška (Donahue et al. 1990):

$$A_{\text{on}} = A_{1950[-25]} = 0,7459 A_{\text{OxII}} \left(\frac{1 - \frac{25}{1000}}{1 + \frac{\delta^{13}\text{C}_{\text{OxII}}}{1000}} \right)^2 \quad (9)$$

kur $\delta^{13}\text{C}_{\text{OxII}}$ ($^{13}/^{12}\text{C}$ izotopinio santykio etalonas) vertė lygi $-17,8 \text{‰}$. AMS sistemose vietoje savitojo aktyvumo yra matuojamas izotopinis santykis ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$, $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$). Izotopinis santykis gali būti išreikštas per formulę (Donahue et al. 1990):

$$\left(\frac{^{14}\text{C}}{^{12}\text{C}} \right) = 0,7459 \left(\frac{^{14}\text{C}}{^{12}\text{C}} \right)_{\text{OxII}} \left(\frac{1 - \frac{25}{1000}}{1 + \frac{\delta^{13}\text{C}_{\text{OxII}}}{1000}} \right)^2 \quad (10)$$

Atliekant $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ santykio matavimus išraiška ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) atspindi savitąjį bandinio aktyvumą A.

Normalizuota bandinio medžiagos savitojo aktyvumo vertė A_{SN} gali būti išreikšta:

$$A_{\text{SN}} = A_s \left(\frac{\left(1 - \frac{25}{1000}\right)}{\left(1 + \frac{\delta^{13}\text{C}}{1000}\right)} \right)^2 \approx A_s \left(1 - \frac{2(25 + \delta^{13}\text{C})}{1000} \right) \quad (11)$$

Normalizavimas atliekamas tam, kad būtų tiksliai įvertinta bandinio savitojo aktyvumo vertė darant prielaidą, kad tiriamasis bandinys būtų mediena, kurios $\delta^{13}\text{C}$ vertė lygi -25 ‰.

Procentai moderniosios anglies (pMC) yra dažnai naudojamas matavimo vienetas aplinkos tyrimuose ir po branduolinių ginklų bandymų laikotarpio surinktų bandinių ^{14}C tyrimuose (Stenström et al. 2011). 1972 metais „8-oje tarptautinėje radioanglies datavimo konferencijoje“ Stuiver ir Polach pristatė ^{14}C matavimo vienetą pMC, kuris yra išreiškiamas formule (Stuiver and Polach 1977b):

$$\text{pMC} = \frac{A_{\text{SN}}}{A_{\text{ON}}} \cdot 100\% \quad (12)$$

Šis santykis yra pastovus laiko atžvilgiu ir yra paremtas šiuo metu patvirtintų ir naudojamų etaloninių medžiagų pagrindu. Šiame darbe naudojami pMC matavimo vienetai, apskaičiuoti pagal (12) formulę. Bandinio savitojo aktyvumo sąryšis su pMC matavimo vienetais išreiškiamas formule:

$$A = \frac{\text{pMC}}{100\%} \cdot \left(\frac{\left(1 + \frac{\delta^{13}\text{C}}{1000}\right)}{0.975} \right)^2 \cdot e^{(1950-y)/8267} \cdot 226 \frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \text{C} \quad (13)$$

1.17. Dujų sklaidos modeliavimas

Radioanglies savitojo aktyvumo koncentracija pažemio ore netoli šaltinio yra nulemta sklaidos ir skiedimosi procesų. Šiuos procesus galima įvertinti modeliuojant skaitiniais metodais. Atmosferos sklaidos modeliai – tai matematinės simuliacijos, apibūdinančios dujų, aerozolių ar teršalų

sklidimą atmosferoje. Sklaidos modeliai yra plačiai naudojami oro teršalų arba toksinų koncentracijos įvertinimui pavėjui nuo taršos šaltinio. Jie gali būti naudojami siekiant prognozuoti taršos kelius, galimus taršos sklaidimo scenarijus pagal vietovės atmosferines sąlygas. Todėl šie dujų dispersijos (sklaidos) modeliai dažnai taikomi siekiant užtikrinant oro kokybę, saugią aplinką ir įvertinti įvairių objektų žmonėms daromą poveikį.

Sklaidos atmosferoje modeliai ir jų variacijos gali būti suskirstyti į 5 tipus:

1. Dėžučių modelis. Tai paprasčiausias iš modelių tipų. Modeliuojant daroma prielaida, kad tam tikras atmosferos oro tūris geografiniame regione yra dėžutės formos. Antroji prielaida apibrėžia, kad oro teršalai dėžutės viduje pasiskirsto tolygiai. Ši prielaida dažniausiai naudojama vidutinėms teršalų koncentracijoms apskaičiuoti. Nors šis modelis yra naudingas ir paprastas pritaikyti, jo galimybės tiksliai numatyti oro teršalų sklaidą ore yra labai ribotos, nes homogeniško teršalų pasiskirstymo prielaida formuluojama itin supaprastintai (Mareddy 2017).
2. Gauso modelis. Tai dažniausiai naudojamas modelio tipas. Modeliuojant daroma prielaida, kad oro teršalų sklaida turi Gauso formos pasiskirstymą, kuris apibrėžia, kad teršalų pasiskirstymas atitinka normalųjį tikimybių pasiskirstymą. Gauso modeliai dažniausiai naudojami nuspėti nuolatinių, plūduriuojančių oro taršos pliūpsnių (vienkartinių išmetimų), kylančių iš antžeminių ar aukštesnių šaltinių, sklaidą. Gauso modeliai taip pat gali būti naudojami siekiant prognozuoti nenutrūkstamų oro taršos pliūpsnių sklaidą. Pagrindinis Gauso modeliavime naudojamas algoritmas yra apibendrintos dispersijos lygtis nuolatiniam taškinio šaltinio srautui (Beychok 2005).
3. Lagranžo modelis. Šis sklaidos modelis matematiškai seka taršos srauto segmentus (burbulus). Modeliuojant segmentų judėjimą atmosferoje, kiekvieno segmento judėjimas nagrinėjamas, kaip atskiras atsitiktinis procesas. Tokiu būdu oro taršos sklaida įvertinama apskaičiuojant daugelio taršos srautų segmentų (burbulų) trajektorijų statistiką. Lagranžo modelis naudoja judančią atskaitos sistemą, kuri susieta su segmentais (burbulais) judančiais iš pradinės vietovės taško.
4. Eulerio modelis. Šis dispersijos modelis yra panašus į Lagranžo modelį, nes turi panašų taršos šaltinio modeliavimo algoritmą, aprašantį daugelio taršos segmentų judėjimą iš pradinės vietos.

Eulerio modelis nuo Lagranžinio skiriasi tuo, kad Eulerio modelis naudoja fiksuotą trimatį Dekarto tinklą, kaip atskaitos sistemą.

5. Sunkiųjų dujų modelis. Šis tankiųjų dujų modelis aprašo sunkesnių už orą taršos dujų sklaidą.

Eulerio modeliai paprastai taikomi, kai skaičiuojami sudėtingi emisijų scenarijai, kuriems reikalingi sprendiniai visuose numatytuose erdvės taškuose. Lagranžo modeliai yra paprastesni ir naudojami vieno taršos šaltinio, apribotame erdvės taškų skaičiuje, emisijų skaičiavimams. Taip pat svarbus skirtumas tarp Eulerio ir Lagranžo modelių yra tai, kad Lagranžo modelis įskaito emisijas bet kokia skiriamąja geba. Nepaisant šių skirtumų, abu metodai yra plačiai taikomi įvairiems scenarijams modeliuoti (Draxler and Hess 1998).

Populiarūs ir dažnai civilinės saugos, nepaprastųjų situacijų valdymui, taršos sklaidos planavimui ir galimų avarijų poveikio vertinimui bei numatymui naudojamos sklaidos modeliavimo priemonės (t.y. matematiniai modeliai ar kompiuterinės programos), paremtos pasitelkiant Gauso, Eulerio ir Lagranžo metodus, yra:

1. Gausinis dujų sklaidos modelis (Ermak 1977, Leelóssy et al. 2014, 2018, Juodis et al. 2016) – tai modelis, padedantis lengvai ir greitai įvertinti teršalų koncentracijos sklaidimo dinamiką, transportavimą ir maišymąsi. Gauso dispersijos modelyje aprašomas vienetinio išmetimo, sudaryto iš dalelių arba dujų, dinamika. Dujų ar dalelių išmetimas skaičiuojamas oro masių srautuose, dalelėms arba dujoms judant vėjo judėjimo greičiu. Gauso dispersijos modelis apima daugybę vienetinių išmetimų skirtingais laiko periodais ir leidžia pakankamai tiksliai sumodeliuoti pastovų taršos šaltinį ir jo daromą poveikį. Kadangi modelis gana paprastas, jis turi ir trūkumų: neįvertina vėjo nepastovumo, suvidurkina meteorologinius faktorius, neatsižvelgia į itin lėto vėjo greičio poveikį, ribotai įtraukia reljefo įtaką. Kiekvienos situacijos vertinime, Gauso modelio skaičiavimų trukmė yra trumpa, o pats modelis yra lengvai adaptuojamas ir pritaikomas, kad tiksliausiai atspindėtų nagrinėjamą problemą.
2. RIMPUFF (Thyker-Nielsen et al. 1999) – tai Lagranžo mezoskalės atmosferos išmetimų difuzijos skaičiavimo modelis, skirtas realaus laiko išmetimų koncentracijų, dozės ir dispersijos skaičiavimams. Modelis pritaikytas apskaičiuoti stacionarių ir nehomogeniškų meteorologinių sąlygų situacijas, modeliuoti trumpalaikių taršos įvykių projekcijas bei pasekmes. Modelyje taršos išmetimo įvykis apibrėžiamas kaip vienetinis burbulas, kuris bėgant laikui skleidžiasi

į vis didesnę burbulų skaičių. Tokiu atveju esant net ir dideliame burbulų skaičiui, srautų išsišakojimas, srautų divergencija, inversijos efektai netolygioje vietovėje yra lengvai apskaičiuojami ir tiksliai įvertinami aukštyje net iki 50 km.

3. CALPUFF (“CALPUFF Modeling System” 2022) yra pažangus Lagranžo teršalų išmetimo modeliavimo įrankis, skirtas teršalų atmosferoje sklaidos modeliavimui. Modeliavimo sistemą sudaro trys dalys: CALMET, CALPUFF ir CALPOST. CALMET – tai trimatis meteorologinis diagnostikos modelis, CALPUFF – oro kokybės sklaidos modelis, CALPOST – rezultatų apdorojimo įrankis. Be šių dalių taip pat esama kitų įrankių, naudojamų ruošiant geofizinius žemės reljefo duomenis, meteorologijos duomenų apdorojimo sistemas ir kita. CALPUFF modelis pajėgus modeliuoti plūduriuojančių, taškinių ir nuolatinių taršos išmetimų dinamiką. Šis modelis taip pat pasižymi galimybe įvertinti pastatų esančių taršos kelyje poveikį.
4. HYSPLIT (Draxler and Hess 1998) – tai integruotos trajektorijos hibridinis (Eulerio ir Lagranžo metodais pagrįstas) vienos dalelės modelis, skirtas greitam situacijų modeliavimui bei jų tyrimams, klimato analizei vykdyti, taikant meteorologinius duomenis. Skaičiavimai atliekami nuosekliai keliose meteorologinėse sistemose naudojant archyvinčius arba oro prognozių duomenis. Ore pasklidusių medžiagų ar dujų koncentracijų skaičiavimai ir judėjimo greitis atliekami pagal vertikalios difuzijos profilį, vėjo šlytį ir horizontalią vėjo srauto deformaciją. Teršalų koncentracijos ore pateikiamos tam tikrame atskaitos sistemos taške kaip išmetimo įvykis ir kaip vidutinė dalelių koncentracija.

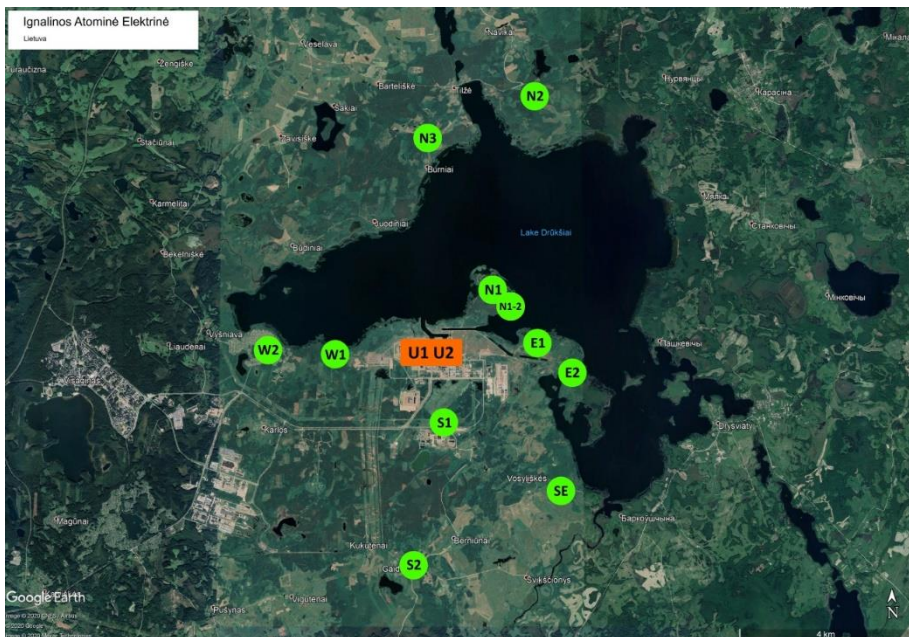
Taip pat esama daug daugiau modeliavimo programų pritaikytų konkrečioms ir unikalioms situacijoms analizuoti. Šiuo atveju, įvertinus pagrindinius uždavinius ir turimus įvesties duomenis, Ignalinos AE poveikio aplinkai tyrimui atlikti buvo pasirinktas klasikinis Gauso dujų sklaidos modelis, kuris pakankamu tikslumu ir norima raiška leidžia atlikti ^{14}C taršos sklaidimo aplinkoje modeliavimą.

TYRIMO OBJEKTAS IR METODIKA

Šis skyrius sudarytas iš 8 poskyrių, kuriuose detaliai aprašytas medienos ir ežero nuosėdų ėminių kelias viso eksperimento metu. Skyriuje trumpai aptarti ėminių vietovės pasirinkimo principai, ėminių pasirikimo ir ekstrakcijos metodai, bandinių paruošimo metodai, masių spektrometrijos analizės ypatumai, duomenų analizė ir dujų sklaidos vietovėje, iš kurios paimti ėminiai, modeliavimo principai.

2.1. Medienos bandiniai ir jų paruošimas

Siekiant tiksliai įvertinti radioanglies savitojo aktyvumo pokytį biosferoje aplink branduolinį objektą, svarbu pasirinkti tinkamas bandinių paėmimo vietas ir foninę vietovę. Ignalinos AE yra šiaurės rytų Lietuvoje, netoli sienos su Baltarusija ir Latvija, prie Drūkšių ežero. Ėminiai buvo imami nuo 2015 metų pavasario iki 2020 metų rudens. 11 paveiksle yra pateiktos visos ėminių paėmimo vietovės aplink Ignalinos AE.



11 pav. Ignalinos AE (energiniai blokai – U1 ir U2) ir bandinių ėmimo vietos regione (N1; N1-2; N2; N3; E1; E2; SE; S1; S2; W1; W2).

12 paveiksle yra pateiktas foninės Vaikštenių vietovės žemėlapis. Foninė vietovė nutolusi 172 km atstumu nuo Ignalinos AE, bei arti nėra kitų branduolinių objektų, tai leidžia užtikrinti, kad nebus jokios antropogeninės

¹⁴C taršos. Iš viso buvo paimta daugiau nei 100 pušų (lot. *Pinus sylvestris*) kernų ėminių.

N1 ir N1-2 bandinių ėmimo aikštelės buvo pasirinktos kuo arčiau Ignalinos AE, miškingoje vietovėje, kurios koordinatės: 55.618251° ilgumos ir 26.584753° platumos (žr. 11 pav.). Svarbiausias N1 vietovės reikalavimas – bandinių ėmimo aikštelė yra dominuojančioje vėjo kryptyje nuo Ignalinos AE. Kitos bandinių paėmimo vietovės N2, E1, E2, SE, S1, W1 ir W2 parinktos aplink Ignalinos AE, siekiant apimti įvairias kryptis ir atstumus.

3 lentelė. Tiriamosios ir foninės vietovių ėminių paėmimo vietos.

Aikštelės ID	Atstumas nuo Ignalinos AE	Sektorius	Vėjo kryptis nuo Ignalinos AE	Koordinatės
Tiriamoji vietovė (Ignalinos AE apylinkės)				
N1	1,9 km	45°	ŠR	55.618251° 26.584753°
N1-2	1,9 km	45°	ŠR	55.618251° 26.584753°
N2	6,6 km	22,5°	ŠŠR	55.659993° 26.597464°
E1	2,4 km	90°	R	55.605329° 26.600069°
E2	3,0 km	90°	R	55.595102° 26.614026°
SE	4,4 km	140°	PR	55.574714° 26.608320°
S1	1,8 km	180°	P	55.588263° 26.564238°
S2	5,1 km	180°	P	55.559276° 26.554338°
W1	2,6 km	270°	V	55.603038° 26.527107°
W2	4,0 km	270°	V	55.604167° 26.499578°
Foninė vietovė (Vaikštenių kaimas)				
B1-1	170 km	-	-	54.469166° 24.778080°
B1-2	170 km	-	-	54.468219° 24.775070°
B1-3	170 km	-	-	54.466976° 24.778174°

Foniniai bandiniai B1-1, B1-2, B1-3 buvo paimti šalia vienas kito (žr. 12 pav.) iš vietovės, esančios toli nuo pramoninių rajonų ir magistralinių kelių, tankiai miškingoje vietovėje (B1-1 koordinatės: 54.469166° ilgumos ir 24.778080° platumos).



12 pav. Foninė vietovė – Vaikšteniai (54,467332°; 24,777268° Trakų raj.).

Iš pradžių, numatytose vietovėse buvo ieškoma medžių, atitinkančių keliamus reikalavimus, pavyzdžiui, tinkama augimo vieta, amžius, diametras, fiziologinė būseną. Bandiniui paimti iš medžio kamieno naudojamas specialiai tam pritaikytas grąžtas. Paimtas bandinys nereikalauja izoliavimo nuo aplinkos sąlygų ir gali būti transportuojamas. Bandinys negali būti užsandarinamas ar kitaip izoliuotas, nes turi išdžiūti, kitu atveju padidėja rizika atsirasti grybeliui ir pelėsiui. Bandinių džiovinimas atliekamas laboratorijoje, vėliau bandiniai saugojami aliuminio folijos pakuotėse (13 pav.). Šio tipo bandinių saugojimas yra itin paprastas, nes atmosferoje esantis CO₂ negali užteršti bandinių, todėl jie gali būti įprastai laikomi laboratorijos sąlygomis neterminuotą laiką.

Iš daugiau nei 100 medžių ėminių tyrimams buvo panaudoti 17 geriausios kokybės rievės turėję ėminiai. Visi 17 ėminių buvo supjaustyti į 580 bandinius, kurie po paruošimo buvo pasverti ir sudėti į 15 ml talpos mėgintuvėlius tolimesniam cheminiam paruošimui.

Atliekant etaloninių medžiagų tyrimus pasirinktos trys medžiagos: IAEA-C3, IAEA-C7 ir IAEA-C9. IAEA-C3 etaloninė medžiaga – tai popierius, pagamintas iš 1989 m. Švedijoje nukirsto 40 metų amžiaus medžio. Mediena buvo pergabenta į Olandiją ir popieriaus gamykloje

apdorota iki celiuliozės. IAEA-C7 etaloninė medžiaga – tai oksalo rūgštis, pagaminta iš natūralios oksalo rūgšties, sumaišytos su sintetinė. IAEA-C9 etaloninė medžiaga – tai beveik fosilija tapęs pietinis agatmedis iš Naujosios Zelandijos pelkės. Stengiantis išvengti užterštumo, IAEA-C9 etaloninė medžiaga (itin sena mediena, kurios celiuliozėje ^{14}C koncentracija yra itin maža) nėra chemiškai apdorota. Medžių bandiniai, naudoti šiame tyrime, aprašyti žemiau.

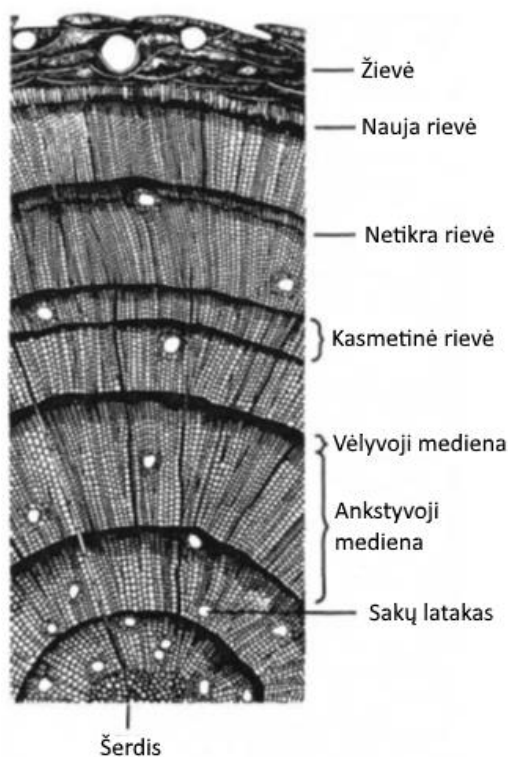


13 pav. Išdžiovintas medžio ėminys.

2.2. Medienos struktūros analizė

Dauguma plikasėklių ir dviskilčių medžių yra sezoniniai ir užaugina vieną išorinę rievę per metus. Šių medžių rievės yra skirstomos į dvi sritis: ankstyvąją ir vėlyvąją medieną. Ankstyvoji mediena, palyginti su vėlyvąja mediena, turi didesnę ertmę ląstelės viduryje, be to, vėlyvoji mediena yra plokštesnė, o ertmė – siauresnė. Ankstyvoji ir vėlyvoji mediena medžio rievėse atskiriama pagal spalvą: ankstyvoji yra šviesesnė, o vėlyvoji – tamsesnė. Ankstyvoji mediena susidaro pavasarį ir ankstyvą vasarą, vėlyvoji mediena – rudenį (14 pav.). Ankstyvosios ir vėlyvosios medienos susidarymas medyje priklauso nuo jo rūšies ir aplinkos sąlygų (James H. Speer. 2009, Bannister 2021).

Medžių bandiniai dažnai tiriami analizuojant jų skerspjūvį. Nupjovus medį matomas jo skerspjūvis, kuriame galime pastebėti vandens indų, sudarančių didžiąją dalį paviršiaus ploto, skerspjūvį. Plikasėkliai medžiai, pavyzdžiui, pušys, eglės, kadagiai, yra paprastesnės struktūros (14 pav.), o kietos medienos medžiai yra sudaryti iš vertikalios krypties vandens indų, kurie, tarpusavyje sujungti, ir sudaro sudėtingesnę medžio struktūrą.



14 pav. Ląstelinė medžio struktūra. Pušies vandens indų ir sakų kanalėlių struktūra. Adaptuota pagal (James H. Speer. 2009).

Bendras medžio augimo modelis apibrėžia, kad medis augdamas savo struktūroje užsifiksuoja įvairius įvykius, turėjusius mažesnę ar didesnę įtaką jo augimui:

$$R_t = f(G_t, C_t, D1_t, D2_t, E_t) \quad (14)$$

kur R_t – rievės plotis, G_t – amžius arba dydis, C_t – metinis klimatas, $D1_t$ – endogeninis sutrikimas, $D2_t$ – egzogeninis sutrikimas, E_t – paklaidos narys, įtraukiantis visus dydžius, kurių neįvertina prieš tai pateikti nariai.

Minėtas koncepcinis modelis parodo, kad rievės plotis kiekvienais metais priklauso nuo kompleksinių priežasčių, lemiančių medžio augimą. Medžiai turi su amžiumi koreliuojančią augimo funkciją, kuri atspindi esamas ir praėjusių metų klimato sąlygas bei kitus efektus. Medienos amžiaus nulemta augimo funkcija rodo, kad medis kiekvieną sezoną užsiaugina tokio pat tūrio naują rievę. Atviroje vietovėje augančios pušies augimą galima aprašyti kaip neigiamą eksponentinę funkciją, tačiau medžio

augimo funkcija tankiame miške yra iškraipyta stiprios kompleksinės aplinkinių medžių įtakos. Medžio augimo modelis parodo, kaip įvairiapusiškai įtraukiami faktoriai, turintys įtakos medžio augimui (James H. Speer. 2009).

2.3. Cheminis celiuliozės išskyrimas

Pasirinktų ir pagal visus reikalavimus atrinktų bandinių cheminis paruošimas atliekamas pasitelkus BABAB cheminio apdorojimo procedūrą (Němec et al. 2010b). Iš pradžių pasveriamas reikiamas etaloninės medžiagos kiekis, pasveriamos medžio rievės. Daugelyje paimtų bandinių rievės yra mažos, bet jų masės užtenka, kad po viso cheminio apdorojimo būtų surinktas pakankamas celiuliozės kiekis. Priešingu atveju itin svarbu tiksliai supjaustyti rieves ir jas suskaičiuoti. Jeigu rievės suskaičiuotos teisingai, siekiant surinkti reikiamą kiekį medžiagos galima maišyti tų pačių metų bandinius. Kad tai būtų galima padaryti, turi sutapti bandinio rievės, medžių augimo vieta ir augimo sąlygos.

Cheminiam paruošimui reikia 20 – 30 mg sausos medienos. Surinkus reikalingą kiekį medžiagos bandiniai dedami į 15 ml talpos mėgintuvėlius, pradedamas cheminis bandinių paruošimas. Pagrindiniai BABAB metodikos etapai (visi, išskyrus ultragarsinę vonelę, vykdomi esant 75 °C temperatūrai):

1. 20 mg sauso medienos bandinio per naktį plaunama 5 ml 4 proc. NaOH tirpale.
2. Bandinys plaunamas dejonizuotu vandeniu, kol pH bus ~7. Bandinys užpilamas 5 ml 4 % HCl tirpalu 1 val.
3. Kartojamas etapas Nr. 2, tik vietoje HCl naudojamas 5 ml 4 % NaOH tirpalas, laikoma 1,5 val.
4. Kartojamas etapas Nr. 2.
5. Tirpalas išpilamas ir įpilama 5 ml 10 % NaClO₂ tirpalo, 5 ml dejonizuoto vandens ir 2 lašai 4 % HCl tirpalo.
6. Po 2 val. balinimo mėgintuvėliai 15 min. patalpinami į ultragarsinę vonelę, kur temperatūra 25 °C.
7. Bandiniai išplaunami dejonizuotu vandeniu, kol pH bus ~4. Į mėgintuvėlius įlašinami 4 lašai 3 pH HCl tirpalo ir bandiniai paliekami džiuoti per naktį.

Išdžiovinti ir sausi bandiniai yra tinkami grafitizuoti.

2.4. Nuosėdų bandinių paruošimas

^{14}C sklaidos Ignalinos AE aplinkos hidrosferoje vertinimui buvo atlikti Drūkšių ežero dugno nuosėdų ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai. Ežero dugno nuosėdų rinkimas pradėtas vykdyti 2019 metų pavasarį. Dugno nuosėdos, kaip aprašyta 1.12 ir 1.13 skyriuose, yra renkamos giliausioje ežero vietoje (koordinatės: 55.647262° ilgumos, 26.583685° platumos) tam specialiai pritaikytu gravitaciniu paėmikliu. Paėmiklis nuleidžiamas prie numatytos bandinių ėmimo vietos pasirinktame gylyje (~20 m) ir paleidžiamas laisvai kristi. 120 cm ilgio organinio stiklo cilindras įsmigęs užsipildo nuosėdomis ir uždarius viršutinę jo sklendę yra ištraukiamas. Skaidri cilindro medžiaga leidžia vizualiai greitai ir efektyviai įvertinti ar paimtas bandinys yra kokybiškas. Toje pačioje vietoje viso buvo paimti trys nuosėdų kernai. Sluoksnių separacija atliekama nedelsiant po bandinio paėmimo, išstumiant po 1 cm nuosėdų iš cilindro. Surinkto sluoksniu medžiaga dedama į mobilių šaldiklį. Ežero dugno nuosėdų bandiniai prieš tolimesnį jų paruošimą yra laikomi užšaldyti.

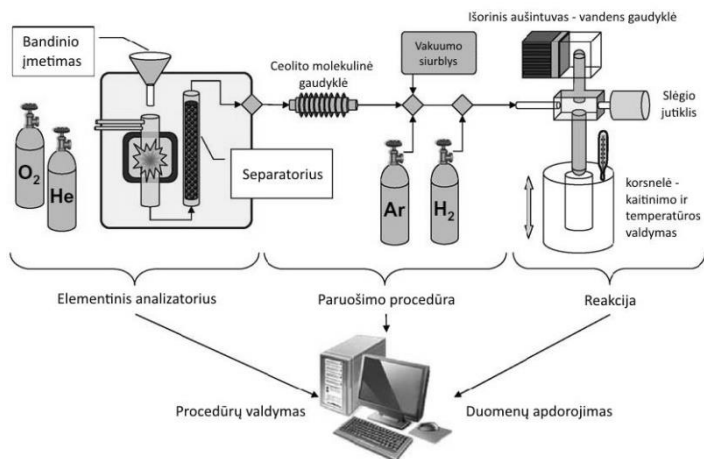
Atitirpdytos ir sausai išdžiovinotos nuosėdos yra pasveriamos (apie 5 - 10 g) ir patalpinamos į mėgintuvėlius. Nuosėdų cheminio valymo žingsniai (Xu and Zheng 2003) tokie:

1. Mėgintuvėliai užpildomi distiliuotu vandeniu ir paliekami ultragarsinėje vonelėje.
2. Gautas mišinys filtruojamas per sieta (tinkelio akučių diametras 106 μm).
3. Į išfiltruotą mišinį įpilama 1,2 M NaOH tirpalo ir kaitinama 80 – 90 °C apie 2 – 3 valandas. Šis paruošimo žingsnis kartojamas 3 kartus.
4. Rūgštinės nuopylos atskiriamos per sifoną, likęs mišinys sumaišomas su 1,2 M NaOH tirpalu ir kaitinamas 80 – 90 °C apie 2 – 3 valandas. Šis paruošimo žingsnis kartojamas 3 kartus.
5. Šarminės nuopylos savo sudėtyje turinčio fulvo ir humino rūgšties frakcijas filtruojamos per sifoną. Nuosėdos atsiradusios po šarminių nuopylų atskyrimo (humino frakcija) yra skalaujamos distiliuotu vandeniu ir išdžiovinamos liofilizuojant.
6. Humino rūgšties frakcija nusodinama įpilant HCl tirpalo į šarmines nuopylas, kol mišinio pH bus mažiau nei 1.
7. Atsiskyrę tirpalai, kur viršuje susikaupia fulvo rūgšties frakcija, yra atskiriamos humino rūgšties frakcijai iškrentant nuosėdomis. Iškritusios nuosėdos sudarytos iš humino rūgšties yra išplaunamos distiliuotu vandeniu ir džiovinamos liofilizuojant.

Pilnai išdžiovinti bandiniai gali būti laikomi įprastomis sąlygomis, tačiau rekomenduojama bandinius užšaldyti siekiant juos saugoti ilgesnį laiką. Taip paruošti bandiniai toliau yra sveriami ir grafitizuojami standartine procedūra.

2.5. Grafitizavimo procedūra

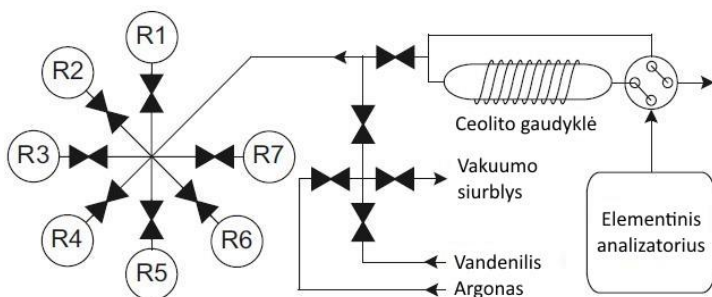
AGE3 sistemoje, siekiant išgauti bandinio sudėtyje esančią anglį CO₂ dujų pavidalu, bandiniai yra deginami. Bandiniui sudegus susidariusios dujos išvalomos ir separuojamos dujų chromatografe, atskiriant CO₂ dujas nuo likusių. Surinktos CO₂ dujos iš elementinio analizatoriaus patenka į grafitizavimo sistemą, kur sukaupiamos molekulinėje gaudyklėje, po to perkeliama į grafitizavimo reaktorių ir vėliau redukuojamos į grafitą ant geležies katalizatoriaus vandenilio aplinkoje. Prietaiso supaprastinta schema pateikta 15 pav.



15 pav. Supaprastinta AGE3 grafitizavimo sistemos schema. Adaptuota pagal (Wacker et al. 2010).

Ceolito molekulinis sietas, patalpintas grafitizatoriuje, veikia kaip CO₂ dujas surenkanti „kempinė“. Ceolitas yra sudarytas iš natrio oksido, aliuminio oksido ir silicio oksido (1 Na₂O; 1 Al₂O₃; 2,8 SiO₂). Sausas ceolitas yra porėtas, o porų angelių diametras sutampa su molekulių skersmeniu, todėl ceolite gali adsorbuotis tam tikro dydžio molekulės (Choe et al. 2013). Molekulinė gaudyklė skirta CO₂ molekulių adsorbicijai atlikti. Iš elementinio analizatoriaus atkeliavusios dujos adsorbuojamos ceolite. Adsorbuotos CO₂ dujos iš ceolito į grafitizavimo reaktorių perkeliama jį

kaitinant. Kapsulė su ceolitu įkaitinama iki 500 °C, besiplėsdamos dujos pasiekia reaktoriaus talpą, kur toliau vyks grafitizavimo reakcija (16 pav.).

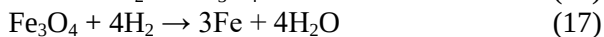


16 pav. AGE-3 reaktorių ir ceolito kapsulės išdėstymo schema. Adaptuota pagal (Wacker et al. 2010).

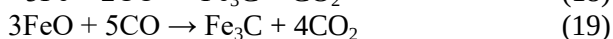
Grafitizavimas – cheminių procesų visuma, kai CO₂ molekulėje esanti anglis yra atskiriama ir sukaupiama kieto grafito pavidalu. Grafitizavimo reakciją apibendrintai aprašo Bosch'o lygtis (Wacker et al. 2010):



Reakcijos negalėtų vykti be geležies miltelių katalizatorius. Katalizatorius reaguoja su CO₂ dujomis ir verčia jas į CO, susidaręs Fe₃O₄ junginys reaguoja su vandenilio dujomis. Po reakcijos su vandeniliu geležis grįžta į pirminį pavidalą ir vėl gali dalyvauti redukcijos reakcijose su CO₂ dujomis. Tokioje cheminėje reakcijoje geležis yra pagrindinės cheminės reakcijos katalizatorius. CO₂ virsmo į CO cheminės reakcijos:

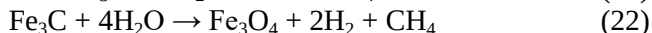


Reakcijos vyksta tol, kol yra vandenilio. Kai vandenilio kiekis sumažėja, geležis pradeda oksiduotis ir jungtis į geležies karbidus:

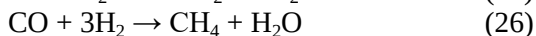
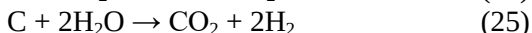
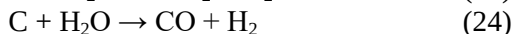
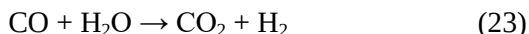


Reikia parinkti tinkamus geležies ir vandenilio kiekius, kad CO₂ redukcijos reakcija vyktų be nuostolių. Į reaktoriaus kamerą įleidus per

mažai vandenilio dujų, susidarys geležies karbidai. Įleidus per didelį vandenilio dujų kiekį, taip pat bus stebimi neigiami padariniai – likutinės vandenilio dujos pradės jungtis su anglimi ir sudarys angliavandenilius arba metano dujas:



H_2 ir H_2O santykis reaktoriuje taip pat turi įtakos reakcijos kokybei. (17) reakcijos galutinis produktas yra vanduo, kuris turi būti efektyviai izoliuotas, kad reakcijos sparta nemažėtų. Reaktoriuje esantys vandens garai reaguoja su metanu:



Esant per dideliems nesukondensuoto vandens kiekiams reaktoriaus kameroje, vandens garai katalizuoja anglies reakcijas su vandeniu. Šių reakcijų rezultatas yra CO ir H_2 dujos, tada grafitizavimas nutrūksta ir reakcijos pradeda vykti atgaline tvarka (Wacker et al. 2010).

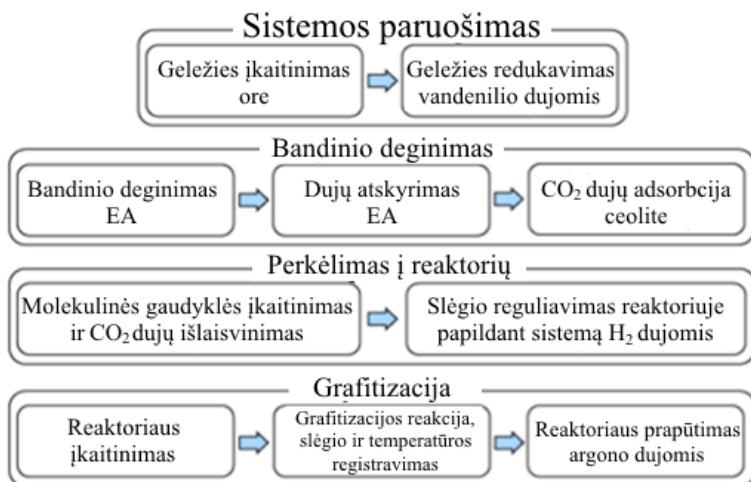
Paskutinis dujų virsmas vyksta tarp CO molekulių:



Aukštoje temperatūroje 2CO molekulė pati skyla į CO_2 ir C . (15) ir (27) lygtys bendrai aprašo grafito susidarymo procesą grafitizavimo sistemoje (Pichler and Merkel 1949, Feb 1957, Němec et al. 2010a, Nagasawa et al. 2013).

Visi grafitizacijos etapai pavaizduoti 17 paveiksle. Visų pirma paruošiamas elementinis analizatorius, įkaitinama degimo krosnelė, patikrinamas sistemos sandarumas. Kelis kartus atliekami tušti deginimo ciklai, siekiant įsitikinti, ar elementinis analizatorius dirba tinkamai. Taip pat paruošiamas darbu grafitizatorius, prapučiami reaktoriai, įkaitinama ir heliu išvaloma molekulinė gaudyklė.

Geležies paruošimas grafitizavimui. Prieš paruošiant prietaisą grafitizavimui, pasveriami 4,5 – 5,2 mg geležies katalizatoriaus miltelių. Šis paruošimas trunka iki valandos. Tai atliekama siekiant išvalyti reaktoriaus kameros talpą nuo išorės oro ir suaktyvinti geležies katalizatorių.



17 pav. Grafitizavimo procedūros žingsniai. Adaptuota pagal (Wacker et al. 2010, Nagasawa et al. 2013).

Bandinių deginimas. Elementinis analizatorius automatizuotai, eilės tvarka įmeta išdėliotus bandinius į deginimo kamerą. CO₂ dujos, išsiskyrusios bandiniui sudegus, yra išvalomos nuo kitų degimo dujų ir nukreipiamos į molekulinę gaudyklę.

Reaktorių užpildymas. Molekulinė gaudyklė kaitinama tam, kad joje sukauptos CO₂ dujos pasišalintų ir besiplėsdamos patektų į parinktą reaktorių. CO₂ dujų perkėlimo nuostoliai siekia mažiau nei 10 proc. Kad dujų perkėlimas baigtas, galima nustatyti iš gaudyklės temperatūros ir nusistovėjusio slėgio reaktoriaus mėgintuvėlyje. Iškart po perkėlimo yra paleidžiamos vandenilio dujos, kad kapiliaruose esančius CO₂ dujų likučius išstumtų į reaktorių. Užbaigiant dujų perkėlimo procesą, į reaktoriaus kamerą įleidžiama vandenilio dujų, kad būtų pasiektas 2,3 H₂/CO₂ dujų santykis (Němec et al. 2010a). Kai perkėlimas baigtas ir reaktorius sandarus, molekulinė gaudyklė yra kaitinama iki 500 °C ir išvaloma helio dujomis.

Grafitizacija. Įjungiami Peltier aušintuvai, įkaitinamos krosnys reaktoriaus temperatūrai palaikyti. Pradedama grafitizavimo reakcija, reakcijos parametrai stebimi iš kintančio slėgio sistemoje. Kai slėgio mažėjimas stabilizuojasi – grafitizacija yra baigta. Grafitizacijos trukmė yra itin svarbi, nes dėl cheminės kinetikos ir didesnės ¹⁴CO₂ molekulių masės, per anksti nutraukta reakcija gali sukurti ryškų izotopinį frakcionavimą (Wacker et al. 2010). Grafitizacija baigiama, kai reaktoriai yra išvakuumuojami, prileidžiama argono dujų. Izoliuoti nuo aplinkos dujų mėgintuvėliai su bandiniais gali būti saugomi ilgą laiką.

2.6. AMS analizės procedūra

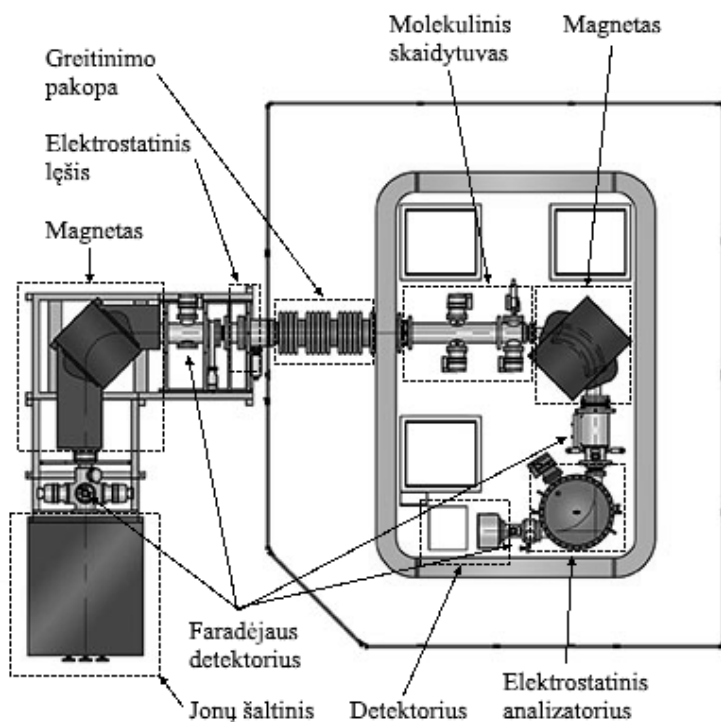
SSAMS (angl. *Single Stage Accelerator Mass Spectrometer*) – vienos pakopos greitintuvo masių spektrometras. Tai itin tikslus masių spektrometras, skirtas detektuoti itin mažus kiekius natūralių izotopų – tiek radioaktyvių, tiek stabilių. Esminis SSAMS privalumas, palyginti su tradiciniais radiometriniais tyrimų metodais, yra mažas tiriamo bandinio kiekis (gali būti miligramai ar dešimtosios dalys miligramo).

Po grafitizavimo reakcijos gauti bandiniai, prieš matuojant greitintuvo masių spektrometru, yra suspaudžiami į katodą. Katodas yra kūgio formos su nedidele cilindro formos skyle viduryje. Įstačius katodą į laikiklį, į cilindro formos ertmę iš mėgintuvėlių suberiamas paruoštas grafitas. Laikiklis statomas į mechaninį presą ir subertas grafitas keletą kartų spaudžiamas iki 200 kg/cm^2 slėgiu. Iš laikiklio išimtas katodas apžiūrimas, būtina įvertinti, ar katodas užpildytas ir ar tinkamai suformuotas grafito bandinio paviršius. Patikrintas katodas dedamas į bandinių ratą, skirtą 39 bandiniams. Bandinių ratas įstatomas į jonų šaltinį (Skog 2007).

Greitintuvo masių spektrometro jonų šaltinyje cezio garai patenka į jonizatorių, kur sukuriama 4,7 kV įtampos potencialų skirtumas. Dėl šio potencialų skirtumo teigiami cezio jonai bombarduoja katodo ertmėje esančią grafitinio bandinio medžiagą, taip iš jos išmušdami neigiamus anglies jonus. Anglies jonai patenka į ekstraktorių, kur veikiami 40 kV įtampos yra įgreitinami. Pirmajame Faradėjaus detektoriuje yra registruojama jonų pluoštelio kuriama srovė. Jeigu srovės pakanka, jonų pluoštelis nukreipiamas į pirmąjį magnetą. Jonai, veikiami Lorencio jėgos, yra atlenkiami skirtingomis trajektorijomis, priklausomai nuo jų masės, krūvio, greičio ir magnetinio lauko stiprio. Po pirmojo filtro, jonų pluoštelis patenka į elektrostatinį lęšį, kur yra sufokusuojami į greitinimo pakopą. Greitinimo pakopoje jonai greitinami 240 kV elektriniame lauke ir toliau patenka į molekulių disociatorių. Šiame SSAMS sistemos komponente disocijuoja ^{13}CH ir $^{12}\text{CH}_2$ molekulės, anglies jonai įelektrinami teigiamu krūviu. Likus tik teigiamai įelektrintiems anglies izotopams ^{12}C ir ^{13}C , jie yra nukreipiami į Faradėjaus detektorius. ^{14}C jonai nukreipiami į elektrostatinį analizatorių, už kurio yra pagrindinis puslaidininkinis detektorius. Labai svarbu į detektorių nukreipti būtent ^{14}C izotopo jonus. Nukreipus, pavyzdžiui, ^{13}C izotopo jonų pluoštelį, detektorius, dėl per didelio jonų pluoštelio srovės stiprio, būtų sugadintas. Parinkus ^{14}C jonų pluoštelį, jis praleidžiamas į detektorių ir pradedamas matavimas (Skog 2007, Synal 2013).

Matavimas SSAMS sistemoje vyksta ne nuolatinio režimu, kaip dažnai yra kituose masių spektrometruose. Matuojant įrenginys dirba 10 Hz dažniu, kur 300 μ s į Faradėjaus detektorių nukreipiama ^{12}C izotopai, 900 μ s – ^{13}C izotopai, o likęs laikas skirtas ^{14}C izotopams registruoti. Matavimo rezultatai gaunami, kai programa apskaičiuoja impulsų signalus, registruotus visuose detektoriuose, ir atitinkamai pagal laiką ir impulsų skaičių apskaičiuoja $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ir $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ santykius. Vienas labai svarbus parametras – tai $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ santykis gaunamas matavimo metu. Šio santykio pokyčiai rodo įrangos veikimo nestabilumus ir leidžia stebėti realias matavimo sąlygas. $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ santykio pokytis nuo vidurkio yra įskaitomas apskaičiuojant $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ santykį, tokiu būdu eliminuojant įrangos darbo nesklandumus (Klody et al. 2005, Skog 2007, Skog et al. 2009).

SSAMS Vilnius spektrometro schema pateikta 18 paveiksle.



18 pav. Vienos pakopos greitintuvo masių spektrometro schema.

2.7. Duomenų apdorojimas *abc* programa

Duomenų apdorojimo programa *abc* 7.0 yra naudojama retojo izotopo santykio ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$), matavimo paklaidų apskaičiavimui ir grafiniam atvaizdavimui. *abc* programa atlieka foninio lygio kompensavimą, apskaičiuoja $\Delta^{13}\text{C}$ korekcijas ^{14}C matavimams, normalizuoja bandinių izotopinį santykį ir kiekvienam bandiniui apskaičiuoja procentinę modernios anglies kiekį (pMC) (National Electrostatics Corporation 2009).

Matavimų metu *abc* 7.0 programa atlieka izotopinio santykio ir paklaidų skaičiavimus. Bendrieji skaičiavimo etapai pateikiami žemiau (National Electrostatics Corporation 2009).

$^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ izotopų santykis (r):

$$r = n/P \quad (28)$$

kur n – matavimo metu užregistruotų ^{14}C jonų skaičius, P – ^{12}C jonų skaičius užregistruotas Faradėjaus detektoriuose.

$$P = N \cdot T \cdot \left(\frac{HE}{e} \right) \quad (29)$$

kur T – vieno ciklo trukmė, per kurią yra registruojami ^{14}C jonai detektoriuje, N – ^{14}C jonų pluošto registravimo ciklų skaičius (impulsinio režimo metu), HE – ^{12}C jonų kuriamos srovės Faradėjaus detektoriuose vidurkis, e – elektrono krūvis ($1,6021892 \cdot 10^{-19} \text{ C}$).

Izotopinio santykio r statistinė paklaida (σ) apskaičiuojama (jeigu $r > 0$):

$$\sigma = \frac{r}{\sqrt{n}} \quad (30)$$

Galutinis ^{14}C rezultatas yra nustatomas apskaičiuojant bandinio pMC vertę prieš tai atlikus $\Delta^{13}\text{C}$ korekciją. $\Delta^{13}\text{C}$ korekcijos faktorius bandiniui k (D_k) gali būti aprašytas:

$$D_k = \frac{1 + \left(\frac{-25}{1000} \right)}{1 + \left(\frac{\delta_k^{13\text{C}}}{1000} \right)} = \frac{0,975}{1 + \left(\frac{\delta_k^{13\text{C}}}{1000} \right)} \quad (31)$$

O santykinė korekcijos faktoriaus paklaida (σ_{Dk}/D_k):

$$\frac{\sigma_{D_k}}{D_k} = \frac{\left(\frac{\sigma_{\delta_k^{13C}}}{1000}\right)}{1 + \left(\frac{\delta_k^{13C}}{1000}\right)} \quad (32)$$

kur $\sigma_{\delta^{13C}}$ – bandinio δ^{13C} vertės paklaida.

Δ^{13C} korekcija bandinio k savitajam aktyvumui (A_k) apskaičiuojant $^{14}C/^{12}C$ santykį aprašoma:

$$A_k[-25] = A_k D_k^2 = A_k \left(\frac{0,975}{1 + \left(\frac{\delta_k^{13C}}{1000}\right)} \right)^2 \quad (33)$$

Bandinio savitojo aktyvumo A_k santykinė paklaida (po delta ^{13}C korekcijos) apskaičiuojama formule:

$$\frac{\sigma_{A_k}}{A_k} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{A_k}}{A_k}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{D_k}}{D_k}\right)^2} \quad (34)$$

2.8. Gauso dujų sklaidos modeliavimas

Vietiniai meteorologiniai duomenys buvo gauti iš Ignalinos AE meteorologinės stoties archyvinių įrašų 2004 – 2017 metams. Duomenys apima Ignalinos AE eksploatacijos (iki 2009 metų pabaigos) ir uždarymo (nuo 2010 metų pradžios) darbų laikotarpį. Ignalinos AE esančioje meteorologinėje stotyje atmosferos matavimų duomenys buvo registruojami ir įrašomi 3 valandų intervalais pažemio lygyje ir 40 metrų aukščio meteorologinio bokšto viršuje. Duomenų bazėje yra 40952 įrašų eilutės sudarytos iš: vėjo krypties, vidutinio ir didžiausio vėjo greičio, temperatūros, drėgmės, atmosferos slėgio ir kritulių kiekio reikšmių. Šie duomenys buvo susisteminti pagal aktyvųjį *Pinus Sylvestris* fotosintezės vykimo laikotarpį, o vėliau buvo naudojami vėjo rožėms sudaryti modeliuojant ^{14}C koncentracijos pasiskirstymą Gauso modeliu apie Ignalinos AE 2004 – 2017 metų laikotarpį.

Integrinis tūrinis ^{14}C radionuklido aktyvumas ore ($Bq \cdot h/m^3$) analizuojamame taške skaičiuojamas Gauso sklaidos modeliu (19 pav.).

35 formulėje papildomai įskaitomas sklindančio debesies nuskurdinimas dėl pakeliui nusėdančių radionuklidų:

$$IntC_{oro_14C}(x, y, z) = \frac{Q_i}{2\pi\sigma_y\sigma_z u} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \cdot V(z, h_e, L, \sigma_z) \cdot F_v(x) \quad (35)$$

kur Q_i – vidutinis ^{14}C radionuklido išmetimo į atmosferą iš Ignalinos AE greitis (Bq/h). Šis dydis nustatomas sprendžiant atvirkštinį sklaidos uždavinį pagal ^{14}C aktyvumo koncentracijų matavimus pušų medienos rievėse. u – vėjo greitis (m/s) debesies ašies aukštyje (150 m). σ_y, σ_z – Gauso skirstinio vidutiniai standartiniai nuokrypiai arba dispersijos koeficientai atitinkamai horizontaliaja ir vertikalioja kryptimis metro atstumu. Jie įvertinami skirtingoms Paskvilio atmosferos stabilumo klasėms (PASK) remiantis žemiau pateiktomis formulėmis ir parametrais. y – efektyvus maksimalus pradinis šleifo ašies pakėlimo aukštis (m). Jis įvertinamas kaip suma pradinio fizinio šaltinio aukščio virš žemės paviršiaus (Ignalinos AE atveju imamas 150 m aukštis) ir šleifo ašies pakėlimo aukščio dėl karštų dujų plūdrumo. Papildomas pakėlimo aukštis dėl plūdrumo laikytas lygiu 0 m. $F_v(x)$ – debesies nuskurdinimo faktorius įtraukiantis pakeliui prarandamo radionuklido kiekį. Jis apskaičiuojamas remiantis (39) formule. z – aukštis virš žemės paviršiaus, kuriame vertinama ^{14}C koncentracija ($z = 15$ m – vidutinis pušų lajos aukštis). Tuo tarpu, teršalų erdvinio skiedimosi narys $V(z, h_e, L, \sigma_z)$ įskaito daugkartinį atspindį nuo atmosferos inversijos sluoksnio ir yra įvertinamas tokia formule:

$$V(z, h_e, L, \sigma_z) = \left(\exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z-h_e}{\sigma_z}\right)^2\right] + \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z+h_e}{\sigma_z}\right)^2\right] + \sum_{n=1}^5 \left\{ \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z-h_e-2nL}{\sigma_z}\right)^2\right] + \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z+h_e-2nL}{\sigma_z}\right)^2\right] + \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z-h_e+2nL}{\sigma_z}\right)^2\right] + \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z+h_e+2nL}{\sigma_z}\right)^2\right] \right\} \right) \quad (36)$$

Vėjo greitis u priklauso nuo aukščio ir gali būti apskaičiuojamas pagal sąryšį:

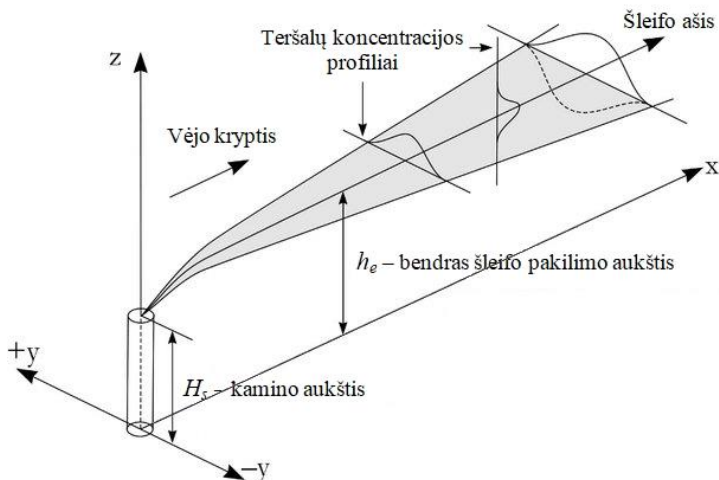
$$u = \bar{u} \cdot \left(\frac{y}{10}\right)^{P_{rel}} \quad (37)$$

Kur, $\bar{u}$ – vidutinis vėjo greitis (m/s) standartiniame 10 m aukštyje (aneometrinis), būdingas kiekvienai atmosferos stabilumo klasei arba paimamas iš meteorologinių matavimų duomenų. P_{rel} – vėjo priklausomybės nuo aukščio laipsnio rodiklis, būdingas kiekvienai stabilumo klasei s (žr. 4 lentelę).

Gauso skirstinio vidutiniai standartiniai nuokrypiai yra funkcijos nuo atstumo iki šaltinio (oro srauto judėjimo x kryptimi) ir apskaičiuojami pagal šias formules, su empiriniais koeficientais $p_y(s)$, $q_y(s)$, $p_z(s)$ ir $q_z(s)$ būdingais kiekvienai atmosferos stabilumo klasei (s):

$$\begin{aligned}\sigma_y(x, s) &= p_y(s) \cdot (x)^{q_y(s)} \\ \sigma_z(x, s) &= p_z(s) \cdot (x)^{q_z(s)}\end{aligned}\quad (38)$$

Jeigu σ_z viršija esamai atmosferos stabilumo klasei būdingą inversijos sluoksnio aukštį L (žr. 5 lentelę), tuomet laikoma, kad z ašimi šleifas daugiau nebesiskiedžia.



19 pav. Radionuklidų sklaidos atmosferoje pagal Gauso modelį pavyzdys.
Adaptuota pagal (Leelóssy et al. 2014).

4 lentelė. Empirinių koeficientų p_y , q_y , p_z ir q_z vertės, naudojamos σ_y ir σ_z apskaičiuoti skirtinguose aukščiuose skirtingoms atmosferos stabilumo klasėms.

PASK	Aukštis virš žemės, m											
	50				100				180			
	p_y	q_y	p_z	q_z	p_y	q_y	p_z	q_z	p_y	q_y	p_z	q_z
A	1,503	0,833	0,151	1,219	0,17	1,296	0,051	1,317	0,671	0,903	0,025	1,5
B	0,876	0,823	0,127	1,108	0,324	1,025	0,07	1,151	0,415	0,903	0,033	1,32
C	0,659	0,807	0,165	0,996	0,466	0,866	0,137	0,985	0,232	0,903	0,104	0,997
D	0,64	0,784	0,215	0,885	0,504	0,818	0,265	0,818	0,208	0,903	0,307	0,734
E	0,801	0,754	0,264	0,774	0,411	0,882	0,487	0,652	0,345	0,903	0,546	0,557
F	1,294	0,718	0,241	0,662	0,253	1,057	0,717	0,486	0,671	0,903	0,485	0,5

5 lentelė. Įvairioms atmosferos stabilumo klasėms būdingi vėjo greičio priklausomybės nuo aukščio rodikliai (P_{rel}), inversijos sluoksnio aukštis (L) ir vidutinis vėjo greitis $\bar{u}$ 10 m aukštyje.

PASK	P_{rel}	L , m	$\bar{u}$, $m \cdot s^{-1}$
A	0,07	1600	4,3
B	0,13	1200	4,7
C	0,21	800	5,6
D	0,34	560	12,1
E	0,44	320	10,9
F	0,44	200	4,9

Radionuklidų debesies nuskurdinimo faktorius $F_V(x)$ apskaičiuojamas pagal Čemberleno sąryšį:

$$F_V(x) = \exp\left(-v_{d_i} \frac{f_D(x)}{\bar{u}_{rel}}\right) \quad (39)$$

Čia:

$$f_D(x) = \left[\exp \int_0^x \frac{1}{\sigma_z(x) \exp \left[\frac{1}{2} \left(\frac{h_e}{\sigma_z(x)} \right)^2 \right]} dt \right]^{-\frac{v_{d,CO2}}{u} \sqrt{\frac{2}{\pi}}} \quad (40)$$

Žemiau pateiktose lentelėse 6 ir 7 yra pateikti ribiniai atmosferiniai duomenys Paskvilio stabilumo klasėms nustatyti. Klasės kiekvienam 3 val. intervalui nustatytos remiantis prieinamais Ignalinos AE meteorologinės stoties 2004 – 2017 metų stebėjimo duomenimis.

6 lentelė. Paskvilio stabilumo klasių sąryšis su ribinėmis vėjo krypties standartinio nuokrypio ir oro temperatūros gradiento vertėmis (European Commission 1993).

PASK	Horizontalus vėjo krypties vidutinis kvadratinis nuokrypis σ_θ , (°)	$\Delta T/\Delta Z$, (°C/100m)
A	$22,5 < \sigma_\theta$	$\Delta T/\Delta Z < -1,9$
B	$17,5 < \sigma_\theta \leq 22,5$	$-1,9 \leq \Delta T/\Delta Z < -1,7$
C	$12,5 < \sigma_\theta \leq 17,5$	$-1,7 \leq \Delta T/\Delta Z < -1,5$
D	$7,5 < \sigma_\theta \leq 12,5$	$-1,5 \leq \Delta T/\Delta Z < 0,5$
E	$3,75 < \sigma_\theta \leq 7,5$	$0,5 \leq \Delta T/\Delta Z < 1,5$
F	$2,0 < \sigma_\theta \leq 3,75$	$1,5 \leq \Delta T/\Delta Z < 4,0$
G	$\sigma_\theta \leq 2,0$	$\Delta T/\Delta Z \geq 4,0$

Sprendžiant atvirkštinį sklaidos uždavinį įvertintas ^{14}C pernašos koeficientas ore TF_{ore} (s/m^3), atspindintis kiek iš Ignalinos AE išleista radioanglis vidutiniškai prasiskiedė per tiriamąjį laikotarpį medžio augimo taške (priklausomai nuo faktinių meteorologinių sąlygų per laikotarpį, vietovės krypties bei atstumo nuo Ignalinos AE). Parametras rodo vidutinę metinę oro tūrinę koncentraciją (Bq/m^3) medžio augimo taške, esant vienetiniam radioaktyviosios anglies aktyvumo išleidimo greičiui $q = 1 \text{ Bq/s}^1$. Jis buvo įvertintas suvidurkinus visų 3 val. laiko segmentų indėlį tiriamajam taškui per metus:

$$TF_{\text{ore}} = \frac{1}{N} \sum_{i \in \text{metai}}^N \frac{C_i(x, y, z, h_e) dt}{q} \quad (41)$$

7 lentelė. Ribinės sąlygos Paskvilio stabilumo klasėms nustatyti (European Commission 1993).

Vėjo greitis (m/s)	Dienos metu apšviestumas (W/m ²)				Valanda prieš saulėlydį arba valanda po saulėtekio	Debesų kiekis nakties metu		
	Stiprus (> 600)	Vidutinis (300-600)	Silpnas (< 300)	Apsiniaukę		0-3	4-7	> 8
≤ 2,0	A	A-B	B	C	D	F ar G	E	D
2,0-3,0	A-B	B	C	C	D	F	E	D
3,0-5,0	B	B-C	C	C	D	E	D	D
5,0-6,0	C	C-D	D	D	D	D	D	D
> 6,0	C	D	D	D	D	D	D	D

Dėl meteorologinių duomenų 1984 – 2003 m. ir 2018 – 2019 m. laikotarpiams trūkumo, buvo priskirta suvidurkinta TF_{ore} metinė 2004 – 2017 metų laikotarpio vertė. Metiniai TF_{ore} koeficientai buvo naudojami perskaičiuojant per metus iš Ignalinos AE išmestą radioanglies aktyvumą $Q_{metinis}$ į orą (Bq/metus), susiejant šį parametą su išmatuotu ^{14}C aktyvumu medžio rievėje:

$$Q_{metinis} = 3,15 \cdot 10^7 \cdot \frac{\Delta C_{metinė_rievė} \cdot F}{TF_{ore}(metinis)} \quad (42)$$

čia: $3,15 \cdot 10^7$ s/metus koeficientas naudojamas konvertuojant išmetimo greitį Bq/s į Bq/metus.

Radioanglies sklaidos atmosferoje vertinimo rezultatai pateikiami 3.5 skyriuje.

REZULTATAI

Rezultatų aptarime pateikiami tyrimų metu gauti duomenys, skaičiavimai ir jų analizė. Šiame skyriuje aptariami ^{14}C savitojo aktyvumo matavimų rezultatai foninėje vietovėje, Ignalinos AE aplinkoje ir Salaspilio mokslinio branduolinio reaktoriaus teritorijoje. ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai medžių rievėse leido sukurti biotos atsako į branduolinio objekto sukurtą ^{14}C taršą regione ir atlikti unikalius radioanglies sklaidos modelinius skaičiavimus. Dėka modelio buvo įvertinta, kokią jonizuojančiosios spinduliuotės dozę Ignalinos AE apylinkių gyventojai galėjo gauti per maisto grandinę.

3.1. Foninio lygmens nustatymas medžių rievėse

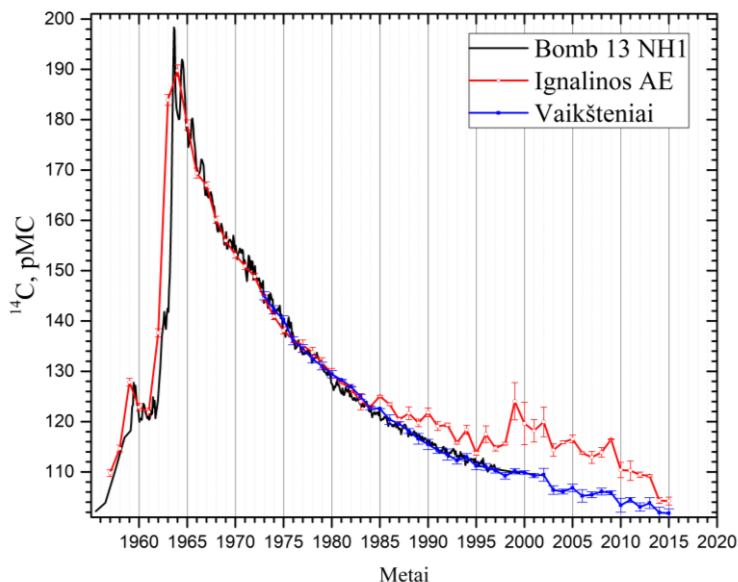
Kaip buvo minėta metodinėje dalyje, foninės vietovės bandiniai buvo surinkti iš 3 medžių 170 km atstumu nuo Ignalinos AE (Vaikšteniai) bei panaudotos rievės iš 1 medžio prie Ignalinos AE aplinkoje, atitinkančios laiko periodą iki elektrinės veiklos pradžios. Drauge šie ^{14}C matavimų rezultatai buvo sugrupuoti, atkuriant foninį lygį nuo 1955 iki 2019 metų. Šis laikotarpis apima branduolinių ginklų bandymų periodą, kurio metu Žemės šiaurinio pusrutulio atmosferoje buvo užfiksuota aukščiausia ^{14}C savitojo aktyvumo vertė, kuri Ignalinos AE vietovėje siekė 189 pMC 1964 metais. 2019 metų duomenimis foninis lygis yra beveik pasiekęs 1950 metų lygį ir siekia 101 pMC (Pabedinskas et al. 2019).

Kitų mokslininkų grupių ^{14}C foninio lygio šiauriniame pusrutulyje tyrimų rezultatai Lietuvoje ir Europoje (Mazeika et al. 2008, Hua et al. 2013, Reimer et al. 2020) gerai sutampa su ^{14}C foninio lygio matavimais 1955 – 2009 metais, koreliacijos koeficientas $r = 0,997$. Pasirinkta Vaikštenių vietovė nėra paveikta antropogeninių taršos šaltinių, todėl ^{14}C savitojo aktyvumo matavimų rezultatai šios vietovės medžių rievėse buvo pasirinkti kaip foninio lygio matavimų atskaitos taškas, tiksliai atspindintis ^{14}C savitąjį aktyvumą šiaurinio pusrutulio atmosferoje.

3.2. ^{14}C pokytis metinėse medžių rievėse iš Ignalinos AE teritorijos

Pirmojoje pasirinktoje bandinių paėmimo vietoje (N1) buvo surinkti 4 medžių ėminiai. Tuo buvo siekiama sumažinti tikimybę parinkti netinkamą medį bandiniams ir pagerinti rezultatų kokybę. Ignalinos AE N1 teritorijoje surinkti bandiniai apima nuo 1973 iki 2015 metų laikotarpį, kuris iliustruoja visą Ignalinos AE darbo laikotarpį (nuo 1983 iki 2009 metų). Laikotarpis

nuo 1973 iki 1983 yra itin svarbus, nes parodo galimus kitų antropogeninių šaltinių poveikius lokaliai ^{14}C balansui. Apjungti foninio lygio ^{14}C matavimai Vaikštenių vietovėje ir Ignalinos AE aplinkoje prieš pradedant jėgainės eksploatavimą sutampa 1σ paklaidų ribose, o patys rezultatai yra pavaizduoti 20 pav.

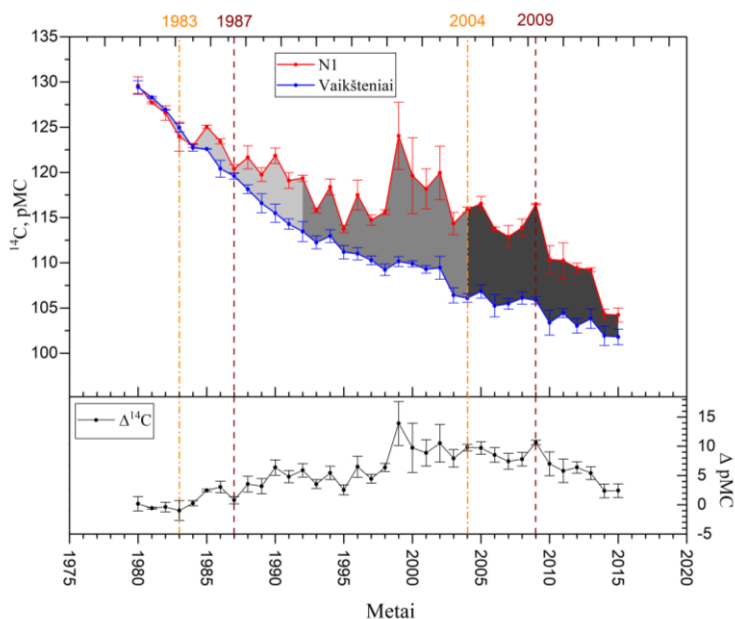


20 pav. ^{14}C savitojo aktyvumo *Pinus Sylvestris* medienos rievėse matavimų rezultatai iš foninės vietovės ir Ignalinos AE paveiktos teritorijos palyginus su šiaurinio pusrutulio ^{14}C savituoju aktyvumu (juoda linija) atmosferoje nuo 1955 iki 2015 metų. Raudona linija reprezentuoja Ignalinos AE paveiktos teritorijos ^{14}C savitąjį aktyvumą, mėlyna linija – Vaikštenių foninės vietovės ^{14}C savitąjį aktyvumą.

Foninio lygio matavimai puikiai sutampa su OxCal duomenų bazės pateikiama kalibracine kreive „Bomb 13 NH1“, o tai leidžia tiksliau įvertinti periodą nuo 1983 iki 2009 metų (žr. 20 pav). Apskaičiuotas ^{14}C savitojo aktyvumo pokytis (perteklius) reprezentuoja Ignalinos AE ^{14}C emisijas į orą, kurias absorbuoja biota. Ignalinos AE poveikis pastebimas nuo pat branduolinio objekto eksploatacijos pradžios 1983 metais.

21 pav. detaliau pavaizduotas Ignalinos AE eksploatacijos laikotarpis nuo 1983 iki 2009 metų. Viso laikotarpio metu stebimas ^{14}C savitojo aktyvumo padidėjimas Ignalinos AE poveikio zonoje (N1). 1983 – 1994 metų laikotarpiu ^{14}C savitojo aktyvumo pokytis nėra didelis: viso laikotarpio metu ^{14}C pokyčio vidurkis siekia apie 3 pMC, maksimali vertė –

6 pMC. Šie ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai sutampa su Mažeikos ir bendra autorių publikuotais duomenimis (Mazeika et al. 2008). Kai 1983 metais pradėjo veikti pirmasis Ignalinos AE energetinis blokas ir po kelerių metų antrasis (1987 m.), pastebimas gana nedidelis Ignalinos AE ^{14}C emisijų fiksavimas medžių rievų bandiniuose. Tai galėjo būti lemta Ignalinos AE eksploatacijos ypatumų, pavyzdžiui, kai per pirmuosius Ignalinos AE darbo metus pakrautas branduolinis kuras nebuvo keičiamas. Ryškesnis ^{14}C savitojo aktyvumo padidėjimas pastebėtas tik 1989 metais, sąlygotas jau dviejų eksploatuojamų energijos blokų. Periodu tarp 1989 ir 1997 metų ^{14}C pokytis išliko stabilus ir staiga daugiau nei dvigubai padidėjo 1999 metais. Toks ^{14}C savitojo aktyvumo padidėjimas laikėsi iki abiejų energetinių blokų galutinio sustabdymo. Šiuo laikotarpiu ^{14}C savitasis aktyvumas vidutiniškai viršijo foną 7 pMC, o maksimalus pokytis siekė 15 pMC. Nuo 2010 metų ^{14}C savitasis aktyvumas sumažėjo ir vidutiniškai buvo 5 pMC didesnis už foną. Toks taršos išsilaikymas galėjo būti lemtas aktyvių Ignalinos AE eksploataavimo nutraukimo darbų. Nuo 2014 iki 2020 metų ^{14}C savitasis aktyvumas sumažėjo dar ryškiau ir priartėjo prie foninio lygmens.



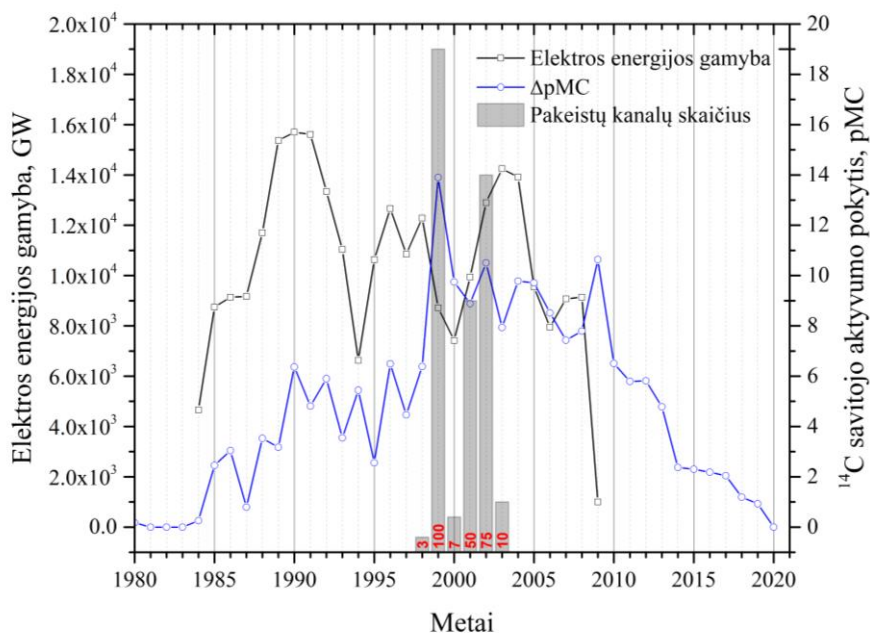
21 pav. ^{14}C savitojo aktyvumo *Pinus Sylvestris* medienos rievėse matavimo rezultatai Ignalinos AE paveiktoje teritorijoje (N1) prieš elektrinės eksploataciją, jos eksploataavimo laikotarpiu ir po jo.

Gautieji rezultatai ir atlikta duomenų analizė leido visą Ignalinos AE veiklos laikotarpį suskirstyti į tris periodus: I – nuo 1983 iki 1997 metų, II – nuo 1998 iki 2009 metų ir III – nuo 2010 iki 2019 metų. Įdomiausias yra antrasis periodas, kurio metu stebimas didžiausias ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse padidėjimas. Pasaulyje yra atlikta keletas tyrimų apie branduolinių reaktorių radionuklidų emisijų priklausomybę nuo pagaminamos elektros energijos kiekio (UNSCEAR 2000, Graven and Gruber 2011). Siekiant detaliau ištirti Ignalinos AE ^{14}C emisijų ir pagamintos elektros energijos kiekio sąryšį buvo pasitelkti ilgamečiai elektros energijos gamybos rodikliai ir statistika. Šie duomenys buvo palyginti su ^{14}C savitojo aktyvumo pokyčiais medžių rievėse. Galima pastebėti, jog pagamintos elektros energijos ir ^{14}C savitojo aktyvumo pokytis koreliuoja pirmajame periode (1983 – 1995). Apskaičiuotas koreliacijos koeficientas yra santykinai aukštas ($r = 0,8$). Tačiau sekančio periodo metu apskaičiuotas koreliacijos koeficientas priešingai yra itin žemas ($r = 0,1$), o tai aiškiai rodo papildomą ^{14}C šaltinį Ignalinos AE teritorijoje, kurio ^{14}C emisijos į orą nesutampa su pagamintos elektros energijos kiekiu. Iš pirmojo periodo, priimant, kad duomenų sutapimas tarp ^{14}C pertekliaus aplinkoje ir pagamintos elektros energijos kiekio siekia 80 %, galima apskaičiuoti ir ekstrapoliuoti teorinį ^{14}C perteklių, susijusį tik su elektros energijos gamyba, kurį į aplinką išmetė jėgainė viso antrojo periodo metu (žr. 22 pav.). Tuomet galima tiksliau įvertinti antrinio šaltinio įtaką ir ^{14}C išmetimus antrojo periodo metu. Labiausiai tikėtina padidėjusių ^{14}C išmetimų iš Ignalinos AE priežastimi gali būti 1998 metais pradėti jėgainės saugos gerinimo projektai, kurių metu buvo atnaujinami energetinių blokų kuro ir valdymo sistemos kanalai.

Išanalizavus 22 paveiksle pateiktus duomenis galima teigti, kad reaktorių modernizavimo darbai galėjo būti pagrindine priežastimi lėmusia ^{14}C savitojo aktyvumo padidėjimą Ignalinos AE aplinkoje. 22 paveiksle yra pavaizduotos reaktorių modernizavimo apimtys – kanalų skaičius pakeistas per metus: 1998 – 3, 1999 – 100, 2000 – 7, 2001 – 50, 2002 – 75, 2003 – 10. Modernizavimo darbų metu buvo keičiami tiek branduolinį kurą, tiek valdymo strypus talpinantys kanalai. Šio proceso metu buvo atidaromas grafito klojinį supantis ir jį aušinantis dujų kontūras, taip per ventiliaciją į aplinką paskleidžiant jame sukauptą ^{14}C .

Nors Ignalinos AE instaliuota ventiliacijos sistema turi aerozolių ir aktyvuotos anglies filtravimo sistemas bei dujų sulaikymo rezervuarus, tačiau reaktoriaus technologinės grandys nėra pritaikytos ^{14}C junginiams dujose efektyviai surinkti, todėl tikėtina, kad didžiausia dalis $^{14}\text{CO}_2$ pasklido į aplinką. Remiantis duomenimis iš Ignalinos AE administracijos (Kutas

1999), cheminio apdorojimo patalpų radioaktyviųjų medžiagų emisijos buvo viena dydžio eile mažesnės negu iš pačių energetinių blokų pastatų. Taip yra todėl, kad didžioji dalis radioaktyviųjų medžiagų iš cheminio apdorojimo patalpų yra sugeriamos filtrų ir negali patekti į aplinką oro keliu. Taip pat tarša oro keliu iš skalbyklos, laikinosios radioaktyviųjų atliekų saugojimo aikštelės, radioaktyviųjų atliekų bitumizavimo patalpų, autotransporto ploviklos ir remonto serviso buvo panašaus dydžio arba mažesnė negu iš energetinių blokų ventiliacijos. Todėl iš 22 paveikslu duomenų galima teigti, jog be įprasto reaktoriaus eksploatavimo, antrojo periodo metu egzistavo dar vienas ^{14}C taršos šaltinis. Antrojo periodo metu nuo 1998 iki 2003 metų ^{14}C savitojo aktyvumo pokytis medžių rievėse gerai koreliuoja su pakeistų kanalų skaičiumi. Tai geriausiai matoma 1999 ir 2002 metais. Kita dalis ^{14}C savitojo aktyvumo fluktuacijų gali būti susijusi su kitais vykdytais darbais, tokiais kaip radioaktyviųjų atliekų tvarkymas prieš ir po jėgainės sustabdymo, eksploatacijos nutraukimo darbai ir kita.



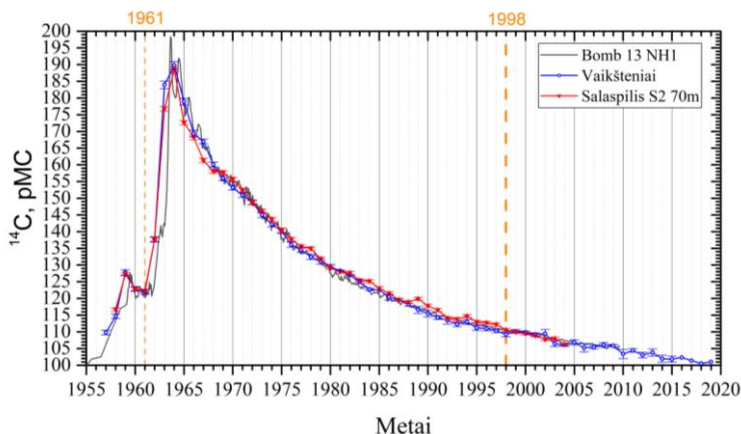
22 pav. Koreliacijos tarp Ignalinos AE pagamintos elektros energijos bei vykdytų modernizavimo darbų ir apskaičiuoto ^{14}C pertekliaus skirtumo analizė.

Taip pat reikia pastebėti, kad 2006 metais Ignalinos AE pradėjo dirbti radioaktyviųjų atliekų cementavimo įrenginiai. Šio objekto atliekų

paruošimo linijoje yra naudojamos jonų mainų dervos, kurios kaupia ^{14}C (Yim and Caron 2006b). Tačiau analizuojant atliktų matavimų rezultatus nebuvo pastebėtas joks ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse pokytis, galintis rodyti šio objekto kuriamą papildomą poveikį ^{14}C emisijoms Ignalinos AE aplinkoje.

3.3. Salaspilio mokslinio branduolinio reaktoriaus poveikio vertinimas

2019 metais taip pat buvo atlikti ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai iš medžių rievų ėminių surinktų prie Salaspilio mokslinio branduolinio reaktoriaus pastato esančio Latvijoje. Pritaikius identiškus bandinių ekstrakcijos ir paruošimo metodus, buvo atlikti *Pinus Sylvestris* celiuliozės ^{14}C matavimai apimantys visą šio branduolinio objekto eksploatavimo laikotarpį nuo 1961 iki 1998 metų. Tyrimo rezultatai yra pateikti 23 pav.



23 pav. ^{14}C savitojo aktyvumo *Pinus Sylvestris* medienos rievėse matavimų rezultatai iš foninės vietovės ir Salaspilio mokslinio reaktoriaus teritorijos. Rezultatai palyginami su šiaurinio pusrutulio ^{14}C savituoju aktyvumu atmosferoje nuo 1955 iki 2015 metų.

Salaspilio branduolinis reaktorius – tai mažos galios, 90 % urano sodrinimo, baseino tipo, vandeniu aušinamas įrenginys, skirtas moksliniams tyrimams atlikti (“Salaspils Research Reactor” 2022). Šio objekto tyrimo rezultatai atskleidžia, kad, remiantis matavimais atliktais iš reaktoriaus teritorijoje surinktų medžių celiuliozės, ^{14}C savitasis aktyvumas prilygsta foniniam lygiui tiek šiaurinio pusrutulio, tiek Vaikštenių vietovės atžvilgiu. Tačiau analizuojant gautus rezultatus matyti, kad Salaspilio matavimo rezultatai yra dėsningai didesni per 0,5 – 1 pMC. Kadangi tyrimo imtis yra

santykiškai maža ir matavimai atlikti tik iš 1 teritorijoje esančio medžio, šio mažo ^{14}C savitojo aktyvumo padidėjimo negalima įvardinti kaip faktinės branduolinio objekto taršos. Taip pat sudėtinga įvertinti, kaip ^{14}C susidarymui galėjo turėti įtakos objekto eksploatavimo metu keičiamo branduolinio kuro sodrinimas, bei galia, kuri per visa laikotarpį padidėjo nuo 2 iki 5 MW.

Šis itin jautrus tyrimo metodas parodo, kad ^{14}C aktyvumo medžių rievėse analizė gali būti plačiai taikoma įvairių branduolinių objektų poveikio aplinkai vertinimui. Tai suteikia galimybę įvertinti galimą poveikio aplinkai mastą net ir po eksploatavimo nutraukimo. Iš gautųjų rezultatų galima teigti, kad Salaspilio mokslinis branduolinis reaktorius nesukėlė ženklaus ^{14}C padidėjimo aplinkoje ir buvo saugus ^{14}C taršos atžvilgiu.

3.4. ^{14}C pernašos atmosferoje modeliavimas

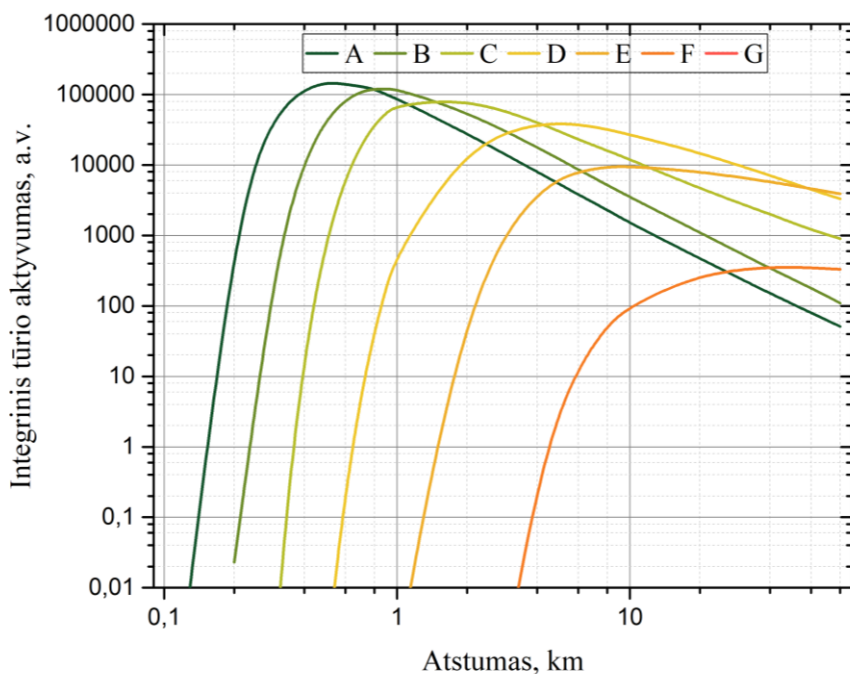
Radioanglis į aplinką iš Ignalinos AE buvo išmetama per 150 metrų aukščio ventiliacijos kamina. $^{14}\text{CO}_2$ patekusi į atmosferą pasklisdavo vėjo kryptimi aplink branduolinį objektą ir dėl fotosintezės procesų, dalis $^{14}\text{CO}_2$ buvo įsisavinama biosferos. Remiantis oficialiai skelbiamais duomenimis (European Commission 2016), per 2008 – 2009 metus ^{14}C išmetimai iš Ignalinos AE antrojo energetinio bloko kito nuo $2,18 \cdot 10^{10}$ iki $3,09 \cdot 10^{10}$ Bq per metus. Po antrojo energetinio bloko galutinio sustabdymo metiniai išmetimai sumažėjo iki $1,15 \cdot 10^9$ – $4,39 \cdot 10^9$ Bq per metus (8 lentelė) (European Commission 2016), tačiau šie duomenys atrodo nerealistiška per maži. Siekiant nepriklausomai įvertinti paveiktą teritoriją ir poveikio dydį, buvo siekiama pritaikyti klasikinį Gauso dujų sklaidos atmosferoje modelį. Iš Ignalinos AE kamino išmestų dujų sklaida, esant skirtingoms Paskvilio atmosferos stabilumo klasėms su būdingais meteorologiniais parametrais, buvo modeliuota HotSpot V3.0 programa. Remiantis atstumo nuo šaltinio ir aukščio nuo žemės paviršiaus priklausomybėmis, integruotas savitojo oro aktyvumo erdvinis pasiskirstymas buvo apskaičiuotas hipotetiniam dujų debesiui, išmestam iš 150 metrų aukščio Ignalinos AE ventiliacijos kamino. Atmosferos klasė nuo A iki G pateiktos 24 pav.

Kadangi fotosintezės procesas augaluose priklauso nuo sezonų kaitos ir paros laiko, įvesties duomenys realios sklaidos vertinimui buvo paimti iš Ignalinos AE meteorologinių duomenų archyvo. Buvo atrinkti kas 3 valandas atlikti temperatūros, vėjo krypties ir greičio skirtinguose aukščiuose matavimai, kurie atitiko paros laiką nuo 6 iki 21 valandos bei

aplinkos temperatūrą nuo +5 °C iki +35 °C. Bendras tinkamų duomenų įrašų skaičius nuo 2004 iki 2017 metų siekė 15081.

8 lentelė. Ignalinos AE deklaruojami ^{14}C išmetimai į atmosferą (European Commission 2016).

Metai	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017
^{14}C išmetimai, Bq/metus	$2,18 \cdot 10^{10}$	$3,09 \cdot 10^{10}$	$1,42 \cdot 10^9$	$3,52 \cdot 10^9$	$2,07 \cdot 10^9$	$4,39 \cdot 10^9$	$2,19 \cdot 10^9$	$4,07 \cdot 10^9$	$1,25 \cdot 10^9$	$1,15 \cdot 10^9$



24 pav. Paskvilio atmosferos stabilumo klasės nuo A iki G.

Ignalinos AE perimetras buvo padalintas į 16 sektorių, kurių plotis 22,5°. Visi individualūs metiniai meteorologinių duomenų įrašai i atitinkantys numatytus metus n , paros laiką ir temperatūrą buvo sugrupuoti ir priskirti vėjo kryptį atitinkančiam sektoriui j – $u_{i\text{-sektorius}_j}$. Metinį (n) integruotą aktyvumą, bet koku atstumu x nuo Ignalinos AE sektoriuje j , esantį $z = 15$ m aukštyje nuo žemės bei esantį išmetimų debesies centrinėje linijoje $y = 0$, galima įvertinti formule:

$$C_{\text{sektorius}_{j,n}}(x) = \frac{1}{2\pi\sigma_y(x)\sigma_z(x)} \sum_{i=1}^N \frac{Q_{i,n}}{u_{i \rightarrow \text{sektorius}_{j,n}}} \left\{ \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{z-H}{\sigma_z(x)} \right)^2 \right] + \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{z+H}{\sigma_z(x)} \right)^2 \right] \right\} \quad (43)$$

Atmosferos stabilumo klasė kiekvienam 3 val. laikotarpiui gali būti tiesiogiai nustatyta iš atmosferos temperatūros vertikalaus gradiento matavimų (šiuo atveju temperatūros prie žemės paviršiaus $z = 2$ m bei meteorologinių matavimų bokšto viršuje $z = 40$ m aukštyje). Alternatyviai, kaip patvirtinimas šiems eksperimentiniams duomenims, tam tikra atstojamoji metinė atmosferos stabilumo klasė netiesiogiai gali būti nustatyta remiantis ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse matavimais, atliktais ta pačia kryptimi, bet skirtingu atstumu nuo šaltinio (taškai N1, N2 ir W1, W2). Pagal Gauso modelį, aktyvumas keičiasi priklausomai nuo atstumo ir yra unikalūs kiekvienai klasei, todėl faktiniai aktyvumo santykiai N1/N2 ir W1/W2 taškams priklausys nuo atitinkamos atmosferos stabilumo klasės. Apskaičiuotų teorinių ir išmatuotų aktyvumo santykių palyginimas pateiktas 9 lentelėje.

9 lentelė. ^{14}C savitojo aktyvumo įvairiais atstumais ta pačia kryptimi santykiai, skirti vidutinei atstojamajai atmosferos stabilumo klasei identifikuoti pagal medžių rievių matavimus ir Gausinio modelio skaičiavimus.

Bandinių paėmimo vieta	Teorinis ^{14}C savitojo aktyvumo santykis ore Paskvilio stabilumo klasėms						Išmatuotų medžio rievių ^{14}C savitojo aktyvumo santykių mediana
	A	B	C	D	E	F	
N1/N2	9,55	8,37	4,43	0,5	0,014	$4,5 \cdot 10^{-9}$	3,79
W1/W2	2,26	2,08	1,74	0,78	0,23	0,0013	0,92

Rezultatai gauti atliekant N1/N2 ir W1/W2 radioanglies savitojo aktyvumo matavimus, padėjo apskaičiuoti medianų vertes 3,79 ir 0,92, kurios atitinkamai nurodo vidutinišką skiedimosi faktorių atitinkantį C ir D stabilumo klases. Taigi radioanglies aktyvumų medžių rievėse santykiai atskleidžia, kad apibendrintai modeliuojant galima pasirinkti C atmosferos

stabilumo klasę, kaip atstojamąjį metinį vidurkį prie Ignalinos AE, ir atitinkamai naudoti tik šiai klasei būdingas Gauso modelio parametrų σ_x ir σ_y vertes.

3.5. Ignalinos atominės elektrinės ^{14}C taršos oro keliu vertinimas

Biosferoje sukauptų ^{14}C aktyvumo koncentracijų duomenys gali būti panaudoti emisijų iš branduolinio objekto į atmosferą vertėms atstatyti ir taip sukurti retrospektyvų Ignalinos AE poveikio aplinkai vertinimo metodą. Taip pat šie matavimai leidžia parinkti labiausiai tinkamus modelio parametrus (parametrizuoti modelį).

Gauso modelio naudojimą reikia pagrįsti, t. y. reikia parodyti, kad ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai pušų rievėse koreliuoja su Gauso modeliu prognozuojamais radioanglies taršos lygiais medžių augimo vietose, apskaičiuotais panaudojant realius meteorologinių stebėjimų duomenis. Šiam tikslui pasiekti buvo pasitelkti penkių taškų (N1, N2, W1, W2, S1), kurie yra išsidėstę įvairiomis kryptimis ir atstumais nuo Ignalinos AE, kur dar pastebimas ženklus branduolinio objekto poveikis (25 pav.), matavimų rezultatai.

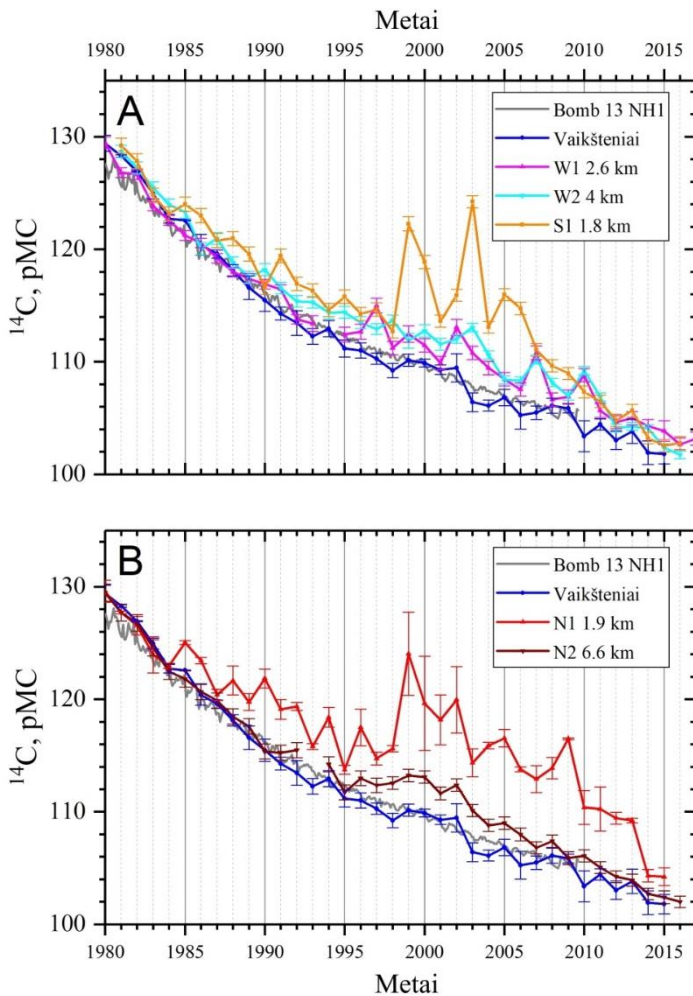
Ištirtas koreliacinis ryšys tarp išmatuoto ^{14}C savitojo aktyvumo pertekliaus medžių rievėse ir Gauso modeliu prognozuojamos integrinės metinės radioanglies koncentracijos ore šiose bandinių ėmimo vietovėse aplink Ignalinos AE. Gautieji koreliacijos koeficientai kiekvieniems metams nuo 2004 iki 2015 metų yra pateikiami 10 lentelėje. Dalis šių rezultatų grafiškai pavaizduoti 26 paveiksle (2004, 2007 ir 2009 metai – eksploatavimo laikotarpiai, 2012 metai – laikotarpis po galutinio sustabdymo).

10 lentelė. Koreliacijos koeficientai tarp išmatuoto ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse ir Gauso modeliu įvertintos integrinės metinės radioanglies koncentracijos ore.

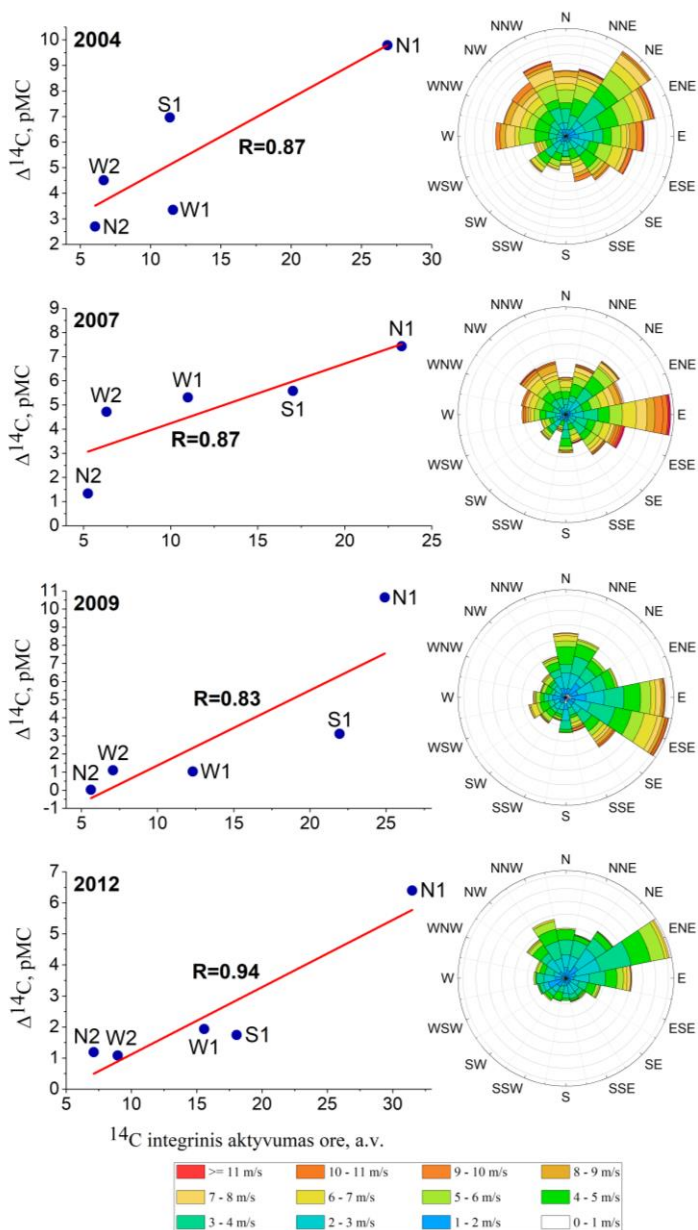
Metai	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
Koreliacijos koeficientas r	0,87	0,98	0,70	0,84	0,75	0,83	0,59	0,88	0,94	0,56	0,84	0,88

Gautieji koreliacijos koeficientai atskleidžia, kad apskaičiuotas teoriniu Gauso modeliu ^{14}C savitojo aktyvumo pasiskirstymas aplinkoje gerai sutampa su faktiniais matavimų rezultatais. Koreliacijos koeficientai (r) kinta nuo 0,56 (2013) iki 0,98 (2005) ir patvirtina, kad radioanglies

išmetimas iš Ignalinos AE į atmosferą vyko santykinai pastoviai, o patys išmetimai gali būti gana efektyviai numatyti ir sumodeliuoti pasitelkiant Gauso dujinių išmetimų sklaidos modeliavimą ir vietovės kasmetines vėjo rožes. Taip pat šis tyrimas patvirtina, kad *Pinus Sylvestris* medžių rievių ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai gali būti panaudoti, kaip retrospektyvi radioanglies išmetimo iš branduolinių objektų stebėsenos priemonė.



25 pav. ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse skirtumas skirtingu atstumu nuo Ignalinos AE ir nuo foninės vietovės Vaikšteniuose.



26 pav. Išmatuoto ^{14}C savitojo aktyvumo pertekliaus medžių rievėse ir Gauso modeliu numatomos integrinės metinės radioanglies koncentracijos ore bandinių ėmimo vietovėse aplink Ignalinos AE.

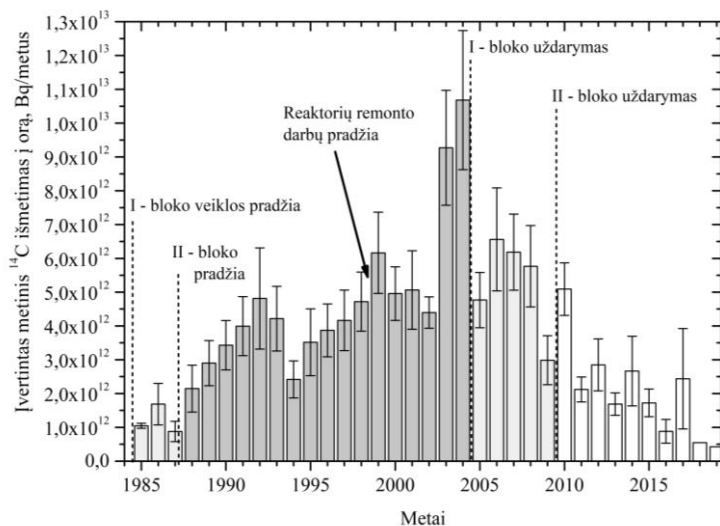
Panaudojant surinktus detalius meteorologinių matavimų duomenis, ^{14}C matavimo medžių rievėse (iš devynių vietovių: E1, E2, N1, N2, S1, S2,

SE, W1 ir W2) rezultatus ir išsprendus atvirkštinį radioanglies sklaidos uždavinį, buvo įvertinti metiniai ^{14}C išmetimų iš Ignalinos AE į atmosferą kiekiai (11 lentelė).

11 lentelė. Įvertinti metiniai radioanglies išmetimų kiekiai į atmosferą iš Ignalinos AE, gauti panaudojant Gauso modelį ir 9 medžių rievių ^{14}C savitojo aktyvumo matavimų duomenis.

Metai/ Vietovė	Įvertintas metinis ^{14}C išmetimas į orą iš Ignalinos AE pagal atskirus medžius (vietoves), Bq/metus									
	S1	S2	SE	N1	N2	W1	W2	E1	E2	Vidurkis
1985	$8,8 \cdot 10^{11}$			$1,1 \cdot 10^{12}$			$1,2 \cdot 10^{12}$		$9,8 \cdot 10^{11}$	$1,0 \cdot 10^{12}$
1986	$1,6 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{12}$	$5,8 \cdot 10^{12}$	$1,4 \cdot 10^{12}$	$6,0 \cdot 10^{11}$	$1,5 \cdot 10^{11}$		$1,2 \cdot 10^{12}$	$9,9 \cdot 10^{11}$	$1,7 \cdot 10^{12}$
1987	$7,3 \cdot 10^{11}$	$1,2 \cdot 10^{11}$	$5,6 \cdot 10^{11}$	$3,6 \cdot 10^{11}$	$6,3 \cdot 10^{11}$		$2,3 \cdot 10^{12}$	$2,0 \cdot 10^{11}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	$8,8 \cdot 10^{11}$
1988	$1,7 \cdot 10^{12}$	$6,5 \cdot 10^{12}$	$3,5 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{12}$	$7,4 \cdot 10^{11}$		$1,2 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^{12}$	$8,6 \cdot 10^{11}$	$2,1 \cdot 10^{12}$
1989	$1,8 \cdot 10^{12}$	$4,7 \cdot 10^{12}$	$6,8 \cdot 10^{12}$	$1,5 \cdot 10^{12}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	$7,7 \cdot 10^{11}$	$1,6 \cdot 10^{12}$	$2,0 \cdot 10^{12}$	$4,7 \cdot 10^{12}$	$2,9 \cdot 10^{12}$
1990	$6,8 \cdot 10^{11}$	$4,2 \cdot 10^{12}$	$6,5 \cdot 10^{12}$	$2,9 \cdot 10^{12}$		$1,4 \cdot 10^{12}$	$4,5 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{12}$	$5,5 \cdot 10^{12}$	$3,4 \cdot 10^{12}$
1991	$3,2 \cdot 10^{12}$	$8,4 \cdot 10^{12}$	$7,3 \cdot 10^{12}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	$2,1 \cdot 10^{12}$	$2,1 \cdot 10^{12}$	$3,8 \cdot 10^{12}$	$9,1 \cdot 10^{11}$	$6,0 \cdot 10^{12}$	$4,0 \cdot 10^{12}$
1992	$2,1 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^{12}$	$1,5 \cdot 10^{13}$	$2,7 \cdot 10^{12}$	$4,5 \cdot 10^{12}$	$3,2 \cdot 10^{11}$	$3,2 \cdot 10^{12}$	$2,4 \cdot 10^{12}$	$7,6 \cdot 10^{12}$	$4,8 \cdot 10^{12}$
1993	$2,5 \cdot 10^{12}$	$6,3 \cdot 10^{12}$	$5,6 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{12}$		$1,1 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^{12}$	$2,6 \cdot 10^{12}$	$8,9 \cdot 10^{12}$	$4,2 \cdot 10^{12}$
1994	$1,0 \cdot 10^{12}$	$1,3 \cdot 10^{12}$	$4,3 \cdot 10^{12}$	$2,5 \cdot 10^{12}$	$2,8 \cdot 10^{12}$	$4,3 \cdot 10^{11}$	$2,3 \cdot 10^{12}$	$1,5 \cdot 10^{12}$	$5,6 \cdot 10^{12}$	$2,4 \cdot 10^{12}$
1995	$2,8 \cdot 10^{12}$	$8,1 \cdot 10^{12}$	$8,2 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$5,3 \cdot 10^{12}$	$8,7 \cdot 10^{11}$	$2,8 \cdot 10^{12}$	$3,5 \cdot 10^{12}$
1996	$2,0 \cdot 10^{12}$	$8,5 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^{12}$	$3,0 \cdot 10^{12}$	$4,4 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{12}$	$4,1 \cdot 10^{12}$		$2,5 \cdot 10^{12}$	$3,9 \cdot 10^{12}$
1997	$2,7 \cdot 10^{12}$	$1,0 \cdot 10^{13}$	$4,2 \cdot 10^{12}$	$2,0 \cdot 10^{12}$	$4,6 \cdot 10^{12}$	$4,5 \cdot 10^{12}$	$4,4 \cdot 10^{12}$	$6,8 \cdot 10^{11}$	$4,0 \cdot 10^{12}$	$4,2 \cdot 10^{12}$
1998	$2,1 \cdot 10^{12}$	$5,2 \cdot 10^{12}$	$9,0 \cdot 10^{12}$	$2,9 \cdot 10^{12}$	$7,4 \cdot 10^{12}$	$1,9 \cdot 10^{12}$	$7,4 \cdot 10^{12}$	$2,7 \cdot 10^{12}$	$3,9 \cdot 10^{12}$	$4,7 \cdot 10^{12}$
1999	$7,5 \cdot 10^{12}$	$1,4 \cdot 10^{13}$	$7,7 \cdot 10^{12}$	$6,4 \cdot 10^{12}$	$6,9 \cdot 10^{12}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	$2,9 \cdot 10^{12}$	$2,9 \cdot 10^{12}$	$5,1 \cdot 10^{12}$	$6,2 \cdot 10^{12}$
2000	$5,5 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^{12}$	$6,8 \cdot 10^{12}$	$4,5 \cdot 10^{12}$	$7,1 \cdot 10^{12}$	$1,5 \cdot 10^{12}$	$4,7 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$8,2 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^{12}$
2001	$2,7 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^{13}$	$7,7 \cdot 10^{12}$	$4,1 \cdot 10^{12}$	$5,2 \cdot 10^{12}$	$5,8 \cdot 10^{11}$	$3,8 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{12}$	$8,4 \cdot 10^{12}$	$5,1 \cdot 10^{12}$
2002	$4,0 \cdot 10^{12}$	$5,4 \cdot 10^{12}$	$5,8 \cdot 10^{12}$	$4,8 \cdot 10^{12}$	$6,5 \cdot 10^{12}$	$3,4 \cdot 10^{12}$	$4,3 \cdot 10^{12}$	$2,0 \cdot 10^{12}$	$3,4 \cdot 10^{12}$	$4,4 \cdot 10^{12}$
2003	$1,1 \cdot 10^{13}$	$1,7 \cdot 10^{13}$	$1,7 \cdot 10^{13}$	$3,6 \cdot 10^{12}$	$8,2 \cdot 10^{12}$	$4,2 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^{13}$	$4,3 \cdot 10^{12}$	$7,4 \cdot 10^{12}$	$9,3 \cdot 10^{12}$
2004	$5,7 \cdot 10^{12}$	$1,7 \cdot 10^{13}$	$1,9 \cdot 10^{13}$	$4,8 \cdot 10^{12}$	$8,6 \cdot 10^{12}$	$4,6 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^{13}$	$6,1 \cdot 10^{12}$	$1,9 \cdot 10^{13}$	$1,1 \cdot 10^{13}$
2005	$3,7 \cdot 10^{12}$	$6,7 \cdot 10^{12}$	$9,7 \cdot 10^{12}$	$5,5 \cdot 10^{12}$	$4,6 \cdot 10^{12}$	$1,9 \cdot 10^{12}$	$2,1 \cdot 10^{12}$	$3,1 \cdot 10^{12}$	$5,6 \cdot 10^{12}$	$4,8 \cdot 10^{12}$
2006	$6,5 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{13}$	$6,6 \cdot 10^{12}$	$4,2 \cdot 10^{12}$	$7,5 \cdot 10^{12}$	$2,3 \cdot 10^{12}$	$5,5 \cdot 10^{12}$	$3,9 \cdot 10^{12}$	$4,6 \cdot 10^{12}$	$6,6 \cdot 10^{12}$
2007	$4,4 \cdot 10^{12}$	$8,9 \cdot 10^{12}$	$1,3 \cdot 10^{13}$	$3,8 \cdot 10^{12}$	$3,8 \cdot 10^{12}$	$6,1 \cdot 10^{12}$	$9,0 \cdot 10^{12}$	$2,8 \cdot 10^{12}$	$3,9 \cdot 10^{12}$	$6,2 \cdot 10^{12}$
2008	$2,8 \cdot 10^{12}$	$8,6 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{13}$	$5,9 \cdot 10^{12}$	$5,1 \cdot 10^{12}$	$9,7 \cdot 10^{11}$	$6,8 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{12}$	$7,4 \cdot 10^{12}$	$5,8 \cdot 10^{12}$
2009	$1,7 \cdot 10^{12}$	$4,1 \cdot 10^{12}$	$6,8 \cdot 10^{12}$	$5,2 \cdot 10^{12}$	$1,0 \cdot 10^{11}$	$1,0 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{12}$	$2,1 \cdot 10^{12}$	$4,1 \cdot 10^{12}$	$3,0 \cdot 10^{12}$
2010	$2,8 \cdot 10^{12}$	$8,5 \cdot 10^{12}$	$6,4 \cdot 10^{12}$	$3,2 \cdot 10^{12}$	$6,7 \cdot 10^{12}$	$3,6 \cdot 10^{12}$	$6,7 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{12}$	$6,4 \cdot 10^{12}$	$5,1 \cdot 10^{12}$
2011	$1,7 \cdot 10^{12}$	$2,4 \cdot 10^{12}$	$2,6 \cdot 10^{12}$	$2,6 \cdot 10^{12}$	$2,0 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^{12}$	$4,2 \cdot 10^{12}$	$2,8 \cdot 10^{11}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	$2,1 \cdot 10^{12}$
2012	$1,3 \cdot 10^{12}$	$8,2 \cdot 10^{12}$	$4,2 \cdot 10^{12}$	$2,5 \cdot 10^{12}$	$2,3 \cdot 10^{12}$	$9,0 \cdot 10^{11}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$1,4 \cdot 10^{12}$	$3,7 \cdot 10^{12}$	$2,8 \cdot 10^{12}$
2013	$6,6 \cdot 10^{11}$	$1,1 \cdot 10^{12}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	$1,9 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{11}$	$2,5 \cdot 10^{12}$	$2,2 \cdot 10^{12}$		$2,8 \cdot 10^{12}$	$1,7 \cdot 10^{12}$
2014	$8,1 \cdot 10^{11}$	$1,1 \cdot 10^{13}$	$3,2 \cdot 10^{12}$	$9,1 \cdot 10^{11}$	$1,8 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$1,9 \cdot 10^{12}$	$6,3 \cdot 10^{11}$	$2,9 \cdot 10^{12}$	$2,7 \cdot 10^{12}$
2015	$4,1 \cdot 10^{11}$	$4,2 \cdot 10^{12}$	$2,5 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^{12}$	$1,3 \cdot 10^{12}$	$2,5 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$2,4 \cdot 10^{11}$	$1,9 \cdot 10^{12}$	$1,7 \cdot 10^{12}$
2016	$2,5 \cdot 10^{11}$	$2,6 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^{11}$	$9,2 \cdot 10^{11}$		$4,4 \cdot 10^{11}$			$6,0 \cdot 10^{11}$	$8,8 \cdot 10^{11}$
2017		$6,8 \cdot 10^{12}$		$8,9 \cdot 10^{11}$		$1,7 \cdot 10^{12}$			$3,8 \cdot 10^{11}$	$2,4 \cdot 10^{12}$
2018				$5,5 \cdot 10^{11}$						$5,5 \cdot 10^{11}$
2019				$4,3 \cdot 10^{11}$						$4,3 \cdot 10^{11}$

Suvidurkinti metiniai ^{14}C išmetimai iš Ignalinos AE į atmosferą, įvertinti pagal 9 medžių metinių rievių matavimus, pateikti 27 paveikslėlyje. Atliekant skaičiavimus atsižvelgta į realias meteorologines sąlygas 2004 – 2014 m., o kitiems laikotarpiams taikytas šio periodo radioanglies skiedimosi atmosferoje efektyvumo vidurkis. Įvertinti metiniai ^{14}C išmetimai į atmosferą kito $4,3 \cdot 10^{11} - 1,1 \cdot 10^{13}$ Bq ribose. Atkurtų išmetimų statistinė santykinė paklaida vidutiniškai siekia apie 24 %.

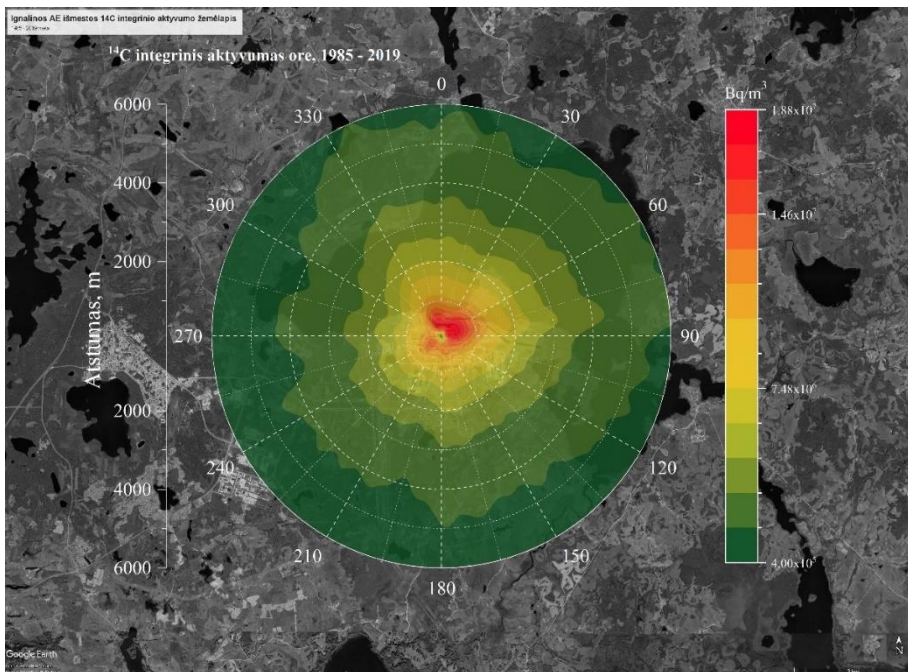


27 pav. Metiniai ^{14}C aktyvumo išmetimai iš Ignalinos AE į orą, įvertinti remiantis ^{14}C aktyvumo koncentracijos matavimais 9 pušų medienos bandinių rievėse.

Iš 27 pav. pateiktų rezultatų matyti, kad metiniai ^{14}C išmetimai iš Ignalinos AE į orą kiekvienais metais yra skirtingi. Dirbant tik I-ajam Ignalinos AE reaktoriaus blokui (1985 – 1987 metų laikotarpis), vidutiniškai išmetimai siekė 1,2 TBq/metus. Pradėjus veikti II-ajam blokui (1988 metais), ^{14}C išmetimai beveik padvigubėjo ir pasiekė 2,1 TBq/metus. Vėliau išmetimų lygis didėjo. ^{14}C išmetimų didėjimas gali būti paaiškintas RBMK reaktoriaus grafite besikaupiančia radioanglimi ir jos išsilaisvinimui eksploatuojant branduolinį objektą. Taip pat pastebimas metinių išmetimų lygio sumažėjimas 1994 metais, kuris koreliuoja su sumažėjusiu tais metais pagamintos elektros energijos kiekiu. Nuo 1994 iki 1998 metų koreliacijos koeficientas tarp metinio išmestos ^{14}C kiekio ir pagamintos elektros energijos lygus $r = 0,67$. Tačiau 1999 metais buvo pradėti didelės apimties reaktorių modernizavimo darbai (reaktoriaus kanalų keitimas ir

kita)(Ežerinskis et al. 2018b), kurie lėmė padidintus radioanglies išmetimus į atmosferą. 2004 metų pabaigoje sustabdžius Ignalinos AE I-ąjį bloką, pastebimas ^{14}C išmetimų sumažėjimas. O nuo 2009 metų pabaigos galutinai sustabdžius abu Ignalinos AE reaktorius, stebimas vienareikšmiškas radioaktyviosios anglies metinių emisijų iš Ignalinos AE mažėjimas.

Panaudojant metinius radioanglies išmetimų kiekius ir pasitelkus Gauso modelį su turimais meteorologiniais duomenimis, buvo sudarytas ^{14}C pasklidimo Ignalinos AE teritorijoje ir už jos ribų dvimatis (2D) žemėlapis. Naudojamas Gauso sklaidos modelis yra modifikuotas, taip, kad su didele erdvine skyra įvertintų ^{14}C pasklidimą visoje teritorijoje. Šiuo žemėlapiu siekiama apjungti pavieniuose taškuose atliktų ^{14}C savitojo aktyvumo matavimų rezultatus su atliktais modeliavimo rezultatais, sukuriant oro keliu pasklidusios ^{14}C taršos iš Ignalinos AE vizualų poveikio žemėlapi (28 pav.).



28 pav. Ignalinos AE ^{14}C išmetimų poveikio žemėlapis laikotarpiu nuo 1985 iki 2019 metų. Spalviniu gradientu pateikiamas ^{14}C integrinis aktyvumas ore nuo $4 \cdot 10^5$ iki $1,88 \cdot 10^8 \text{ Bq/m}^3$.

Žemėlapis sudarytas įvertinant ^{14}C savitąjį aktyvumą medžių rievėse nuo 1985 iki 2019 metų, žr. 22 pav. Modeliuojant buvo atsižvelgta į realias meteorologines sąlygas trijų valandų intervalais, vegetacines sąlygas (temperatūrą ir šviesą) ir metinių ^{14}C emisijų vertes, kurios yra pateiktos 11

lentelėje. Pasirinktas modeliavimo laikotarpis nuo 1985 iki 2019 metų apima visą Ignalinos AE eksploatacijos periodą ir sudaro galimai susikaupusios ^{14}C savitojo aktyvumo žemėlapi (28 pav.).

Žemėlapyje spalvine gama nuo raudonos iki žalios spalvos yra pateiktas ^{14}C integrinis aktyvumas ore, atspindintis labiausiai tikėtiną ilgalaikę iš Ignalinos AE išleistų dujų su radioanglimi sklaidą. Raudonos spalvos zona žymi didžiausio sumodeliuoto aktyvumo sritį, kur ^{14}C integrinis aktyvumas per 1985 – 2019 metų laikotarpį gali siekti $1,88 \cdot 10^7 \text{ Bq/m}^3$. Oranžinė ir geltona spalvos žymi vidutinio aktyvumo sritis, žalia spalva žymi mažiausio aktyvumo teritoriją, kur ^{14}C integrinis aktyvumas sumažėja iki $4 \cdot 10^5 \text{ Bq/m}^3$. Paveiksle pateikta sumodeliuota 12 km skersmens apskritimo formos poveikio zona, kuri vienareikšmiškai atspindi galimą $^{14}\text{CO}_2$ pasklidimą Ignalinos AE aplinkoje. Matoma radioanglimi galimai paveikta teritorija apima ir vietines gyvenvietes bei vakarų pusėje esančią sodų bendriją. Šio modelio skaičiavimuose nebuvo atsižvelgta į galimą Drūkšių ežero poveikį ^{14}C integriniam aktyvumui ore, tačiau dėl ženklių mažesnio paviršiaus šiurkštumo, oro masių srautai į šiaurės ir šiaurės rytų puses galėjo transportuoti $^{14}\text{CO}_2$ su mažesniu pasipriešinimu, sąlygojant didesniu atstumu siekiantį poveikį. Matoma, kad galimai daugiausiai taršos ^{14}C pateko į už 400 m šiaurės rytų kryptimi nuo Ignalinos AE esantį pusiasalį.

Kitų mokslininkų atlikti ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai prie Ignalinos AE ir jų gauti rezultatai patvirtina šio darbo metu sukurto modelio rezultatus. Prof. J. Mažeikos ir bendraautorių pateikti (Mazeika et al. 2008) raudonos spalvos zonoje surinktų medžių rėvių ^{14}C savitojo aktyvumo matavimų rezultatai siekia nuo 1 iki 11 ΔpMC viršijimą, lyginant su natūraliu fonu (1984 – 2002 metais). Jų apytiksliai įvertintos galimos ^{14}C išmetimų vertės ($10^{12} - 10^{13} \text{ Bq}$ per metus) gerai sutampa su pateikto modelio rezultatais. Didžiausias 11 ΔpMC skirtumas stebimas 1999 metų rievėje iš medžio augančio šiaurės rytų pusiasalio viduryje. V. Jakimavičiūtės-Maseliienės ir bendraautorių 2003 metų straipsnyje pateikiami sezoninių augalų ^{14}C savitojo aktyvumo matavimo rezultatai siekia net 68 ΔpMC skirtumą nuo foninio lygmens (Jakimaviciute-Maseliene et al. 2003). Šio darbo modelio rezultatus patvirtina ir A. Magnusson su bendraautoriais atlikti ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai samanose ir vienmečiuose augaluose, surinktuose prie Ignalinos AE aušinimo vandens kanalų bei pramoninės kanalizacijos nubėgimo kanalo, kur buvo nustatytos pačios didžiausios ^{14}C aktyvumo koncentracijos (Magnusson et al. 2007).

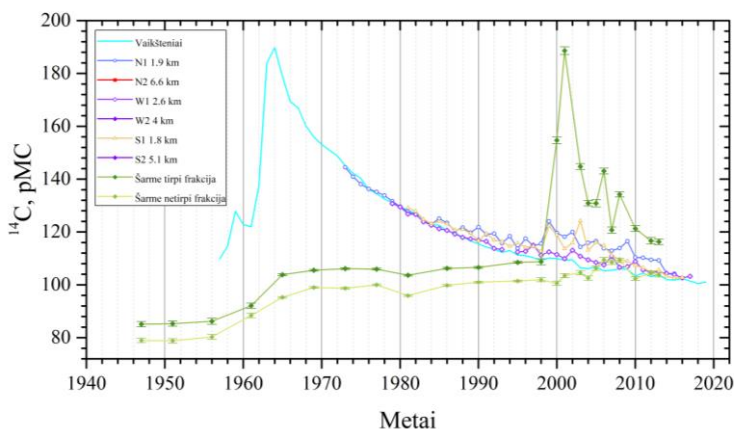
Šiame darbe sukurtas modelis yra universalus ir turint tinkamus įvesties duomenis, jį galima pritaikyti ir taršos iš kitų objektų ar scenarijų analizei. Tai ypatingai svarbu, nes modelis gali suteikti galimybę tirti branduolinius objektus ir juos retrospektyviai charakterizuoti kaip taršos šaltinius. Iš pateikto žemėlapiu 28 pav. galima susidaryti tikslią oro kelių sklindančių radionuklidų prognozę ir panaudoti jų galimam pasklidimui aplinkoje tirti. Šiam tikslui pasiekti taikant sukurtą modelį užtenka pritaikyti tikslus meteorologinius vietovės duomenis ir atlikti vieno medžio radiometrinius ^{14}C savitojo aktyvumo tyrimus. Tai ženkliai supaprastina bet kokios paskirties branduolinių objektų ilgametį monitoringą, pasitelkiant gamtos komponentus (pvz. medžius) kaip bioindikatorius – pasyvaus stebėjimo ir taršos registravimo įrankius.

3.6. ^{14}C savitasis aktyvumas ežero dugno nuosėdose

Ženkli Ignalinos AE eksploatacijos lemta viršfoninė ^{14}C tarša Drūkšių ežero dugno nuosėdos pastebima jau pirmuose organinių nuosėdų sluoksniuose (Barisevičiūtė et al. 2021), žr. 29 pav. Nuo 1985 iki 2000 metų Ignalinos AE eksploatacijos metu branduolinė jėgainė į Drūkšių ežerą išmesdavo vidutiniškai nuo $2,4$ iki $3,7 \cdot 10^8$ Bq/metus radioanglies. Daugiausiai tai buvo įvairiuose junginiuose ištirpusi neorganinė anglis (INA). 2000 – 2001 metais stebimas ženkliai padidintos taršos radioanglimi laikotarpis, kuris siekė $1,8 \cdot 10^9$ Bq/metus. Modeliuojant įvairius hipotetinius taršos scenarijus R. Barisevičiūtė su bendraautoriais nustatė, kad galimai pasklidusi tarša turėjo poveikį ežero dugno nuosėdų persiskirstymo pusiausvyrai tarp šarme tirpių (AS) ir šarme netirpių (AIS) frakcijų. Sutrikdytas natūralus AS ir AIS frakcijų balansas atsistatė tik po 2006 metų (žr. 29 pav.), todėl tikėtina, kad ^{14}C izotopas į ežerą pateko ištirpęs vandenyje su organiniais cheminiais teršalais. Šis tyrimas prisidėjo ir papildė 2010 metais publikuotus J. Mažeikos ir bendraautorų atliktus Drūkšių ežero tyrimus bei pagrindė pateikiamą išleidimą iš Ignalinos AE į Drūkšių ežero vandenį teršalų aktyvumą, kuris siekė 10^8 Bq/metus.

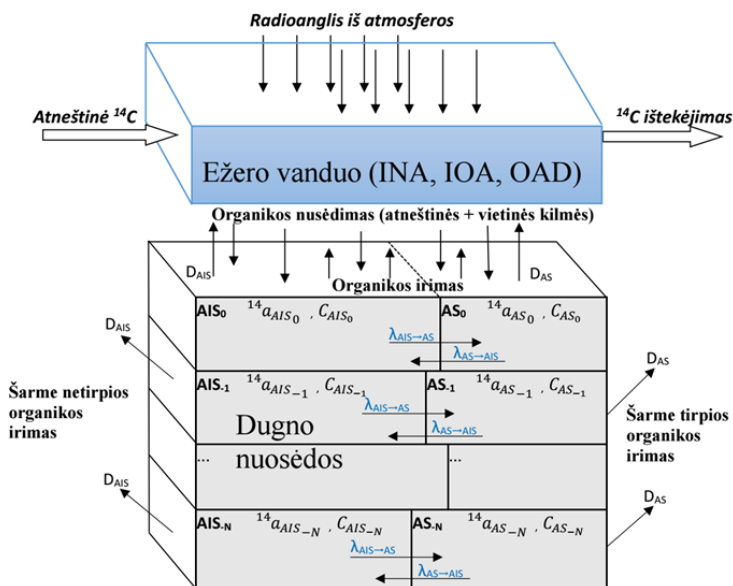
Pagal ^{14}C savitojo aktyvumo matavimus Drūkšių ežero dugno nuosėdų sluoksniuose, pavyko sukurti radioanglies ciklo ežero ekosistemoje dinaminį modelį, retrospektyviai įvertinantį ežero taršos radioanglimi šaltinius. Modeliu galima atkurti ^{14}C aktyvumo vertikaliuosius profilius dviejose ežero dugno nuosėdų organinėse frakcijose: šarme tirpioje (būdinga santykinai mobilioms humusinėms rūgštims) ir šarme netirpioje (būdinga mažai mobiliam huminui). ^{14}C kaupimasis ežero dugno nuosėdose buvo modeliuojamas atskirai kiekvienam sluoksniui, įvertinant atneštinės

(alochtoninės) ir vietinės kilmės (autochtoninės) radioanglies nusėdimą iš ežero vandens storumės ant dugno nuosėdų paviršiaus, ^{14}C frakcionavimą, ilgalaikį nusėdusių organinių medžiagų irimą (dekompoziciją) ir radioanglies pasišalinimą iš ekosistemos bei jos persiskirstymą tarp AS ir AIS frakcijų nuosėdų sluoksnyje. Modelio schema pateikta 30 paveikslėlyje. Kiekvienas atskirai sumodeliuotas nuosėdų sluoksnis atspindi radioanglies kaupimosi per vienerius metus suminį rezultatą ir atsižvelgia į vėliau ekosistemos patiriamus radioanglies praradimus dėl organikos irimo ir persiskirstymo tarp frakcijų iki dominančios datos (t. y. iki dugno nuosėdų kolonėlės mėginio paėmimo datos).



29 pav. ^{14}C savitojo aktyvumo matavimai Drūkšių ežero dugno nuosėdų frakcijose, kartu su medžių rievių matavimų rezultatais.

Rezultatų ekstrapoliacija bei naujausi matavimų duomenys rodo, kad ^{14}C koncentracija Drūkšių ežero ekosistemoje grįžo į foninį lygį tik po 2019 metų. Šis tyrimo metodas, įtraukiantis ^{14}C savitojo aktyvumo matavimus iš ežero dugno nuosėdų, gali būti naudojamas kaip dar vienas aktyvus biosensorius branduolinių objektų monitoringui. Dėl itin aukšto radioanglies savitojo aktyvumo matavimų jautrumo, leidžiančio tiksliai charakterizuoti šaltinio parametrus, šis ^{14}C biosensoriaus taikymas taršos vertinimui išlieka vienu iš daugiausiai informacijos galinčiu suteikti įrankiu ^{14}C taršos tyrimams aplinkoje. Bendroje visumoje su atmosferiniais ^{14}C savitojo aktyvumo matavimais, šie dugno nuosėdų tyrimų metodai ir vertinimo modeliai suteikia būtinos informacijos tiksliam taršos šaltinio charakterizavimui ir svarbiausia, yra pasyvūs poveikio indikatoriai akumuliuojantys radionuklidų sukuriamą poveikį. Tai suteikia plačias tyrimų galimybes atkuriant poveikio aplinkai scenarijus tiek vandenyje, tiek ir sausumoje.



30 pav. Anglies ciklo modelio schema ežero ekosistemoje: “ežero vanduo - dugno nuosėdos”. Adaptuota pagal (Barisevičiūtė et al. 2021).

3.7. Galimos efektinės dozės vietiniams gyventojams vertinimas

Ignalinos AE eksploatavimo metu į aplinką įprastai patenkanti ^{14}C fotosintezės procesų metu yra užfiksuojama biomasėje. 2001 metais TATENA pateiktoje saugumo ataskaitoje yra pasiūlytas modelis, skirtas individų gaunamos ^{14}C radionuklido sukuriamos dozės įvertinimui (International Atomic Energy Agency 2001). Didžiausią poveikį ^{14}C radionuklidas sukuria dėl vidinės apšvitos, patekdamas per maisto grandinę su augalinės kilmės maisto produktais. ^{14}C radionuklido poveikis kitais keliais lemia mažiau nei 1 % gaunamos dozės. Teigiama, kad biomasėje esanti $^{14}\text{CO}_2$ yra balanse su atmosfera ir individo gaunama efektinė dozė yra proporcinga ^{14}C savitajam aktyvumui maiste. Efektinė dozė apskaičiuojama pagal formulę:

$$D = A \cdot f \cdot g \quad (44)$$

kur, D – efektinė dozė ($\mu\text{Sv}/\text{metus}$), A – savitasis ^{14}C aktyvumas maisto medžiagose ($\text{Bq}/\text{kg C}$), f – lokaliai užauginto ir vartojamo augalinio maisto daugiklis (šiuo atveju teigiama, kad $f = 1$), g – dozės poveikio koeficientas ($5,6 \cdot 10^{-5} \mu\text{Sv kg/Bq}$).

12 lentelė. Galimos efektinės dozės Ignalinos AE vietiniams gyventojams įvertinimo rezultatai.

Metai	^{14}C savitojo aktyvumo padidėjimas	Perteklinis ^{14}C savitasis aktyvumas biomasėje	Individuali efektinė dozė per maisto grandinę
	ΔpMC	$\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{C}$	$\mu\text{Sv} \cdot \text{metus}^{-1}$
2019	0,93	2,10	0,12
2018	2,29	5,18	0,29
2017	2,04	4,62	0,26
2016	2,18	4,94	0,28
2015	2,38	5,39	0,30
2014	2,82	6,38	0,36
2013	4,78	10,80	0,60
2012	5,81	13,14	0,74
2011	5,79	13,09	0,73
2010	7,95	17,97	1,01
2009	10,64	24,04	1,35
2008	7,79	17,61	0,99
2007	7,43	16,80	0,94
2006	9,51	21,49	1,20
2005	9,71	21,95	1,23
2004	11,91	26,92	1,51
2003	17,83	40,29	2,26
2002	10,50	23,74	1,33
2001	8,88	20,08	1,12
2000	9,75	22,03	1,23
1999	13,90	31,42	1,76
1998	6,39	14,44	0,81
1997	4,72	10,66	0,60
1996	6,49	14,68	0,82
1995	4,60	10,40	0,58
1994	5,72	12,93	0,72
1993	9,16	20,71	1,16
1992	8,57	19,37	1,08
1991	6,21	14,04	0,79
1990	6,37	14,39	0,81
1989	4,84	10,94	0,61
1988	3,53	7,98	0,45
1987	2,21	5,00	0,28
1986	3,20	7,23	0,40
1985	2,46	5,55	0,31
1984	2,24	5,06	0,28

Remiantis matavimų ir ^{14}C sklaidos modeliavimo tyrimų rezultatais bei Ignalinos AE išmetimų duomenimis, galima patikimai įvertinti ^{14}C taršą iš šio objekto bei jos nulemtą efektinę jonizuojančios spinduliuotės dozę. Gauti rezultatai pateikiami 12 lentelėje.

Apskaičiuota, kad Ignalinos AE ^{14}C emisijų nulemta efektinė dozė nuo 1984 iki 1994 metų siekė 0,62 μSv per metus, 1995 – 2009 metais siekė 1,15 μSv per metus ir nuo 2010 iki 2019 metų siekė 0,47 μSv per metus. Didžiausia metinė efektinė dozė užfiksuota 2003 metais ir siekė 2,26 μSv per metus. Visu Ignalinos AE eksploatacijos metu nuo 1984 iki 2019 metų vidutinė efektinė dozė buvo lygi 0,81 μSv per metus. Didžiausią poveikį nulėmė Ignalinos AE reaktorių remonto ir saugos gerinimo darbai. Po Ignalinos AE reaktorių galutinio sustabdymo 2004 ir 2009 metais, jėgainės eksploatavimo nutraukimo ir radioaktyviųjų atliekų tvarkymo darbai turėjo ryškų poveikį ^{14}C emisijoms. Ignalinos AE poveikis aplinkai sumažėjo ~ 2,5 karto, tačiau ^{14}C emisijos ir toliau vyko.

Panašūs tyrimų rezultatai buvo paskelbti S. Xu ir bendraautorių 2016 metais publikuotame straipsnyje, kur pateikiami ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse tyrimų rezultatus prie Fukushima BWR tipo AE (Xu et al. 2016). Jie nustatė 15,8 pMC padidėjimą medžių rievėse medienoje nuo 2000 metų, o apskaičiuota efektinė dozė siekė 2,0 μSv per metus. Prof. J. Mažeika su bendraautoriais nustatė kiek mažesnę efektinę ^{14}C sukeltos dozės poveikį, kuris siekė maždaug 1,6 μSv per metus (Mazeika et al. 2008). Remiantis A. Magnusson ir bendraautorių atliktais tyrimais prie Ignalinos AE, galima ir ženkliai didesnę gyventojų gaunama metinė efektinė dozė, kuri išskirtinėmis aplinkybėmis galėtų siekti net 87,92 μSv per metus, jeigu maistui būtų vartojami vietinės kilmės produktai iš labiausiai užterštos teritorijos prie Ignalinos AE. (Magnusson et al. 2004).

Konstatuojama, kad Ignalinos AE eksploatacijos nulemta gyventojų apšvita dėl ^{14}C emisijų į aplinką yra nežymi (μSv per metus dydžio eilės), ją lyginant su Lietuvos gyventojų natūraliai gaunama efektine apšvitos doze, kuri siekia apie 2,5 mSv per metus.

IŠVADOS

1. Išanalizuoti kasmetinių medžių rievų nuo 1955 iki 2019 metų ^{14}C aktyvumo matavimai, detaliau išnagrinėtas 1983 – 2015 metų laikotarpis ir įvertinta Ignalinos AE aplinkoje sukurta ^{14}C tarša viso AE eksploatavimo ir jos eksploatavimo nutraukimo laikotarpiais, remiantis foninės vietovės ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse matavimų rezultatais, kurie 99,7 % tikslumu sutampa su literatūrinių šaltinių duomenimis.
2. Pagal ^{14}C matavimų duomenis rievėse išskirti 3 Ignalinos AE veiklos etapai : Pirmas (1983 – 1994 m.), ^{14}C koncentracijos padidėjimas Ignalinos AE aplinkoje siekė iki 4,7 pMC, kur koncentracijos kaita sutampa su metinėmis elektros energijos gamybos vertėmis ($r = 0,8$) ir atspindi ^{14}C foninės emisija į aplinką saugaus jėgainės darbo metu. Antras (1994 – 2009 m.), ^{14}C vidutinė vertė padidėjo iki 9,3 pMC ir galimai yra sąlygota reaktoriaus tobulinimo projektų ir kuro kanalų planinių keitimo darbų. II periodo metu ^{14}C koncentracija aplinkoje išaugo, o eiga nebesutampa su metine elektros energijos gamyba. Trečiasis (2010 – 2019 m.), ^{14}C koncentracija aplinkoje sumažėjo iki 3,7 pMC ir atspindi situaciją po reaktorių galutinio sustabdymo, kurio metu nors ir stebimas ^{14}C išmetimų sumažėjimas, tačiau foninis lygis yra viršijamas.
3. Pritaikius Gauso ^{14}C dispersijos modelį rekonstruota ^{14}C sklaidos evoliucija branduolinio objekto aplinkoje per tam tikrą laikotarpį leidžia atkurti objekto eksploatavimo ir įvykių istoriją. Vėjo rožių ir ^{14}C savitojo aktyvumo matavimų aplink Ignalinos AE analizė atskleidžia stiprų procesų ryšį, rodantį biosferos jautrumą ^{14}C emisijoms ir Gauso modelio pritaikymo tinkamumą.
4. ^{14}C savitojo aktyvumo medžių rievėse matavimų duomenų ryšys su literatūriniais šaltiniais apie inertinių dujų sklaidą atmosferoje atskleidžia inertinių dujų ir radioanglies sklaidimo procesų panašumus, tai patvirtina, kad ^{14}C matavimai medžių rievėse gali būti naudojami kaip netiesioginė priemonė dujinių emisijų iš AE įvertinimui. Tai pasitarnaus radionuklidų emisijų iš AE tikslesniam modeliavimui, jonizuojančiosios spinduliuotės poveikiui gyventojams, florai ir faunai įverti.
5. Iš Drūkšių ežero dugno nuosėdų matavimo rezultatų sudarytas radioanglies mainų ežere modelis parodė, kad nuo 1985 iki 2000 metų Ignalinos AE eksploatacijos metu į Drūkšių ežerą išmesdavo vidutiniškai nuo 2,4 iki $3,7 \cdot 10^8$ Bq/metus. Daugiausiai tai buvo

ištirpusi neorganinė anglis įvairiuose junginiuose. 2000 – 2001 metais stebimas ženkliai padidintos taršos ^{14}C laikotarpis, kuris siekė net $1,8 \cdot 10^9$ Bq/metus.

6. Apskaičiuota, kad nuo 1984 iki 2009 metų Ignalinos AE veikla lėmė papildomą efektinę apšvitos dozę gyventojams per maisto grandinę, kuri vidutiniškai siekė $0,81 \mu\text{Sv}$ per metus. Ši papildoma apšvita yra menka palyginus su natūraliu foniniu lygiu (apie $2,5 \text{ mSv}$ per metus).

LITERATŪROS SĄRAŠAS

- Aerts-Bijma AT, van der Plicht J, Meijer HAJ. 2001. Automatic AMS Sample Combustion and CO₂ Collection. *Radiocarbon* 43: 293–298.
- Aiken GR, McKnight DM, Wershaw RL, MacCarthy P. 1985. An introduction to humic substances in soil, sediment, and water. *Humic Substances in Soil, Sediment, and Water: Geochemistry, Isolation, and Characterization*: 1–9.
- Almenas K, Kaliatka A, Ušpuras E. 1998. Ignalina RBMK-1500, a source book.
- Ancius D, Ridikas D, Remeikis V, Plukis A, Plukienė R, Cometto M. 2005. Evaluation of the activity of irradiated graphite in the Ignalina Nuclear Power Plant RBMK-1500 reactor. *Nukleonika* 50: 113–120.
- Anderson EC, Libby WF, Weinhouse S, Reid AF, Kirshenbaum AD, Grosse A V. 1947. Natural Radiocarbon from Cosmic Radiation. *Physical Review* 72: 931–936.
- Bannister B. 2021. Tree-Ring Building.
<http://lrr.arizona.edu/about/treerings>.
- Barisevičiūtė R, Maceika E, Juodis L, Pabedinskas A, Šapolaitė J, Ežerinskis Ž, Butkus L, Remeikis V. 2021. Modeling of ¹⁴C Vertical Distribution in Bottom Sediments of the Ignalina Nuclear Power Plant Cooling Reservoir. *Water* 2021, Vol. 13, Page 1397 13: 1397.
- Berglund BE. 1986. Handbook of holocene palaeoecology and palaeohydrology.
- Beychok MR. 2005. Fundamentals of stack gas dispersion. 4th ed. Milton R. Beychok, Newport Beach Calif.
- Billett MF, Garnett MH, Hardie SML. 2006. A Direct Method to Measure ¹⁴CO₂ Lost by Evasion from Surface Waters. *Radiocarbon* 48: 61–68.
- Bol RA, Harkness DD. 1995. The Use of Zeolite Molecular Sieves for Trapping Low Concentrations of CO₂ from Environmental Atmospheres. *Radiocarbon* 37: 643–647.
- Bowman S. 1995. Radiocarbon Dating.
- Bradley RS. 1999. Paleoclimatology, Reconstructing climates of quaternary, Second Edition.
- Bradley RS. 2000. Paleoclimatology: Reconstructing Climates of the Quaternary. Page Academic Press.
- Brauer A, Allen JRM, Mingram J, Dulski P, Wulf S, Huntley B. 2007a. Evidence for last interglacial chronology and environmental change from Southern Europe. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 104: 450–455.
- Brauer A, Wulf S, Mangili C, Moscariello A. 2007b. Tephrochronological dating of varved interglacial lake deposits from Piànico-Sèllere (Southern Alps, Italy) to around 400 ka. *Journal of Quaternary Science* 22: 85–96.
- Brendel O, Iannetta PPM, Stewart D. 2000. A Rapid and Simple Method to

- Isolate Pure Alpha-Cellulose 11: 7–10.
- CALPUFF Modeling System. 2022. .
- Choe K, Song S, Lee JH, Song MY, Kang J, Yun M, Kim JC. 2013. A Study on Trapping CO₂ by Using a Molecular Sieve for 14C AMS Sample Preparation. *Radiocarbon* 55: 421–425.
- Cohen AS. 2003. Paleolimnology: The History and Evolution of Lake Systems. Oxford University Press.
- Corella JP, Benito G, Rodriguez-Lloveras X, Brauer A, Valero-Garcés BL. 2014. Annually-resolved lake record of extreme hydro-meteorological events since AD 1347 in NE Iberian Peninsula. *Quaternary Science Reviews* 93: 77–90.
- Czymzik M, Brauer A, Dulski P, Plessen B, Naumann R, von Grafenstein U, Scheffler R. 2013. Orbital and solar forcing of shifts in Mid- to Late Holocene flood intensity from varved sediments of pre-alpine Lake Ammersee (southern Germany). *Quaternary Science Reviews* 61: 96–110.
- Van Daele M, Moernaut J, Silversmit G, Schmidt S, Fontijn K, Heirman K, Vandoorne W, De Clercq M, Van Acker J, Wolff C, Pino M, Urrutia R, Roberts SJ, Vincze L, De Batist M. 2014. The 600 yr eruptive history of Villarrica Volcano (Chile) revealed by annually laminated lake sediments. *Geological Society of America Bulletin* 126: 481–498.
- Damon PE, Lerman JC, Long A. 1978. Temporal Fluctuations of Atmospheric 14C: Causal Factors and Implications. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* 6: 457–494.
- Donahue DJD, Linick TW, Jull AJT. 1990. Isotope-ratio and background corrections for accelerator mass spectrometry radiocarbon measurements. *Radiocarbon* 32: 135–142.
- Draxler RR, Hess GD. 1998. An overview of the HYSPLIT_4 modelling system for trajectories, dispersion and deposition. *Australian Meteorological Magazine* 47: 295–308.
- EPRI. 2010. Estimation of carbon-14 in nuclear power plant gaseous effluents.
- Ermak DL. 1977. An analytical model for air pollutant transport and deposition from a point source. *Atmospheric Environment (1967)* 11: 231–237.
- European Commission. 1993. PC COSYMA Version 1.0 User Guide.
- European Commission. 2016. Radioactive Discharges Database. <http://europa.eu/radd/nuclideDischargeOverview.dox?pageID=NuclideDischargeOverview>.
- Ežerinskis Ž, Šapolaitė J, Pabedinskas A, Juodis L, Garbaras A, Maceika E, Druteikienė R, Lukauskas D, Remeikis V. 2018a. Annual Variations of 14 C Concentration in the Tree Rings in the Vicinity of Ignalina Nuclear Power Plant. *Radiocarbon* 60: 1227–1236.
- Ežerinskis Ž, Šapolaitė J, Pabedinskas A, Juodis L, Garbaras A, Maceika E, Druteikienė R, Lukauskas D, Remeikis V, Šapolaite J, Pabedinskas A,

- Juodis L, Garbaras A, Maceika E, Druteikiene R, Lukauskas D, Remeikis V. 2018b. Annual variations of ^{14}C concentration in the tree rings in the vicinity of Ignalina nuclear power plant. *Radiocarbon* 60: 1227–1236.
- Feb. 1957. Rates of Carbon Formation From Carbon Monoxide-Hydrogen Mixtures. *Soc* 66: 1859–67.
- Fifield LK. 1999. Accelerator mass spectrometry and its applications. *Reports on Progress in Physics* 62: 1223–1274.
- Furbank RT, Hatch MD. 1987. Mechanism of C_4 Photosynthesis: The size and composition of the inorganic carbon pool in bundle sheath cells. *Plant physiology* 85: 958–964.
- Gagnon AR, McNichol AP, Donoghue JC, Stuart DR, von Reden K. 2000. The NOSAMS sample preparation laboratory in the next millennium: Progress after the WOCE program. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 172: 409–415.
- Gaiko VB, Korablev NA, Solovlev EN, Trosheva TI, Shamov VP, Umanets MP, Shcherbina VG. 1985. Discharge of ^{14}C by nuclear power stations with RBMK-1000 reactors. *Soviet Atomic Energy* 59: 703–705.
- Gaudinski JB, Dawson TE, Quideau S, Schuur EAG, Roden JS, Trumbore SE, Sandquist DR, Oh S-W, Wasylishen RE. 2005. Comparative analysis of cellulose preparation techniques for use with ^{13}C , ^{14}C and ^{18}O isotopic measurements. *Analytical Chemistry* 77: 7212–7224.
- Godwin H. 1962. Half-life of radiocarbon. *Nature* 195: 984.
- Graven HD, Gruber N. 2011. Continental-scale enrichment of atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ from the nuclear power industry: Potential impact on the estimation of fossil fuel-derived CO_2 . *Atmospheric Chemistry and Physics* 11: 12339–12349.
- Graven HD, Guilderson TP, Keeling RF. 2012. Observations of radiocarbon in CO_2 at La Jolla, California, USA 1992–2007: Analysis of the long-term trend. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 117: 2302.
- Hajdas I, Bonani G, Thut J, Leone G, Pfenninger R, Maden C. 2004. A report on sample preparation at the ETH/PSI AMS facility in Zurich. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 223: 267–271.
- Hardie SML, Garnett MH, Fallick AE, Rowland AP, Ostle NJ. 2005. Carbon Dioxide Capture Using a Zeolite Molecular Sieve Sampling System for Isotopic Studies (^{13}C and ^{14}C) of Respiration. *Radiocarbon* 47: 441–451.
- Harley GL, Grissino-Mayer HD. 2012. Tree Rings as Environmental Indicators. *The Berkshire Encyclopedia of Sustainability* 6: 359–361.
- Hua Q, Barbetti M, Rakowski AZ. 2013. Atmospheric Radiocarbon for the Period 1950–2010. *Radiocarbon* 55: 2059–2072.
- IAEA. 2004. Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14. Vienna.

- IAEA. 2017. PRIS - Country statistics, Lithuania. <https://www.iaea.org/PRIS/CountryStatistics/CountryDetails.aspx?current=LT>.
- IAEA. 2020. Nuclear Power Reactors in the World.
- Ignalinos atominė elektrinė - Istorija. <http://www.iae.lt/apie-mus/istorija/>.
- International Atomic Energy Agency. 2001. Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment.
- J.Ragauskas A. 2013. Chemical composition of wood. *Education vision*: 2–9.
- Jakimaviciute-Maseliene V, Mazeika J, R. Petrosius. 2003. Spatial distribution of tritium and radiocarbon in Ignalina NPP region. *Sveikatos Mokslo*.
- James H. Speer. 2009. Fundamentals of tree-ring research. Page Dendrology.
- Janovics R, Kern Z, Güttler D, Wacker L, Barnabás I, Molnár M. 2013a. Radiocarbon Impact on a Nearby Tree of a Light-Water VVER-Type Nuclear Power Plant, Paks, Hungary. *Radiocarbon* 55: 826–832.
- Janovics R, Kern Z, Güttler D, Wacker L, Barnabás I, Molnár M. 2013b. Radiocarbon Impact on a Nearby Tree of a Light-Water VVER-Type Nuclear Power Plant, Paks, Hungary. *Radiocarbon* 55: 826–832.
- Jenkins CLD, Furbank RT, Hatch MD. 1989. Inorganic Carbon Diffusion between C4 Mesophyll and Bundle Sheath Cells: Direct Bundle Sheath CO₂ Assimilation in Intact Leaves in the Presence of an Inhibitor of the C4 Pathway. *Plant Physiology* 91: 1356.
- Joris O, Weninger B. 1998. Extension of the 14C Calibration Curve to ca. 40,000 Cal BC by Synchronizing Greenland 180/16O Ice Core Records and North Atlantic Foraminifera Profiles: A Comparison with U/Th Coral Data. *Radiocarbon Proceedings of the 16th International 14C Conference, edited by W. G. Mook and J. van der Plicht* 40: 495–504.
- Jull AJT, Donahue DJ, Hatheway AL, Linick TW, Toolin LJ. 1986. Production of Graphite Targets by Deposition from CO/H₂ for Precision Accelerator 14 C Measurements. *Radiocarbon* 28: 191–197.
- Juodis L, Filistovič V, Maceika E, Remeikis V. 2016. Analytical dispersion model for the chain of primary and secondary air pollutants released from point source. *Atmospheric Environment* 128: 216–226.
- Kaarina Weckström, Krystyna M. Saunders, Peter A. Gell, C. Gregory Skilbeck. 2017. Applications of Paleoenvironmental Techniques in Estuarine Studies. Page (K. Weckström, K. M. Saunders, P. A. Gell, and C. G. Skilbeck, Eds.). Springer Netherlands, Dordrecht.
- Kelts K, Briegel U, Ghilardi K, Hsu K. 1986. The limnogeology-ETH coring system. *Swiss Journal of Hydrology* 48: 104–115.
- Kerndorff H, Schnitzer M. 1980. Sorption of metals on humic acid. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 44: 1701–1708.
- Key RMM. 2001. Radiocarbon. *Encyclopedia of Ocean Sciences* 75: 2338–2353.

- Kleber M, Lehmann J. 2019. Humic Substances Extracted by Alkali Are Invalid Proxies for the Dynamics and Functions of Organic Matter in Terrestrial and Aquatic Ecosystems. *Journal of Environmental Quality* 48: 207–216.
- Klody GMM, Schroeder JBB, Norton G a., Loger RLL, Kitchen RLL, Sundquist MLL. 2005. New results for single stage low energy carbon AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 240: 463–467.
- Koarashi J, Fujita H, Nagaoka M. 2015. Atmospheric discharge of ¹⁴C from the Tokai reprocessing plant: comprehensive chronology and environmental impact assessment. *Journal of Nuclear Science and Technology* 3131: 1–8.
- Konstantinov EA, Korablev NA, Solov'ev EN, Shamov VP, Fedorov VL, Litvinov AM, Olariu A, Zakaria M, Rääf C, Mattsson S. 1989. ¹⁴C emission from RBMK-1500 reactors and features determining it. *Soviet Atomic Energy* 66: 77–79.
- Kulbe T, Niederreiter R. 2003. Freeze coring of soft surface sediments at a water depth of several hundred meters. *Journal of Paleolimnology* 29: 257–263.
- Kunz C. 1985. Carbon-14 discharge at three light-water reactors. *Health Physics* 49: 25–35.
- Kutas S. 1999. Nuclear energy in Lithuania: nuclear safety. Report for the year 1998. Vilnius.
- Kutschera W. 2013. Applications of accelerator mass spectrometry. *International Journal of Mass Spectrometry* 349–350: 203–218.
- Lake - Sediments and sedimentation | Britannica.
<https://www.britannica.com/science/lake/Sediments-and-sedimentation>.
- Larocque-Tobler I, Filipiak J, Tylmann W, Bonk A, Grosjean M. 2015. Comparison between chironomid-inferred mean-August temperature from varved Lake Żabińskie (Poland) and instrumental data since 1896 AD. *Quaternary Science Reviews* 111: 35–50.
- Larsen CPS, MacDonald GM. 1993. Lake morphometry, sediment mixing and the selection of sites for fine resolution palaeoecological studies. *Quaternary Science Reviews* 12: 781–792.
- Last WM, Smol JP. 2001. Tracking Environmental Change Using Lake Sediments. Basin Analysis, Coring, and Chronological Techniques. Springer Verlag.
- Latter AL, Plesset MS. 1960. Carbon-14 production from nuclear explosions. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 46: 241–247.
- Leavitt SW, Danzer SR. 1993. Method for batch processing small wood samples to holocellulose for stable-carbon isotope analysis. *Analytical Chemistry* 65: 87–89.
- Leelőssy Á, Lagzi I, Kovács A, Mészáros R. 2018, February 1. A review of

- numerical models to predict the atmospheric dispersion of radionuclides. Elsevier Ltd.
- Leelőssy Á, Molnár F, Izsák F, Havasi Á, Lagzi I, Mészáros R. 2014. Dispersion modeling of air pollutants in the atmosphere: a review. *Open Geosciences* 6: 257–278.
- Lehmann J, Kleber M. 2015. The contentious nature of soil organic matter. *Nature* 528: 60–68.
- Levin I, Kromer B. 2004. The Tropospheric $^{14}\text{CO}_2$ Level in Mid-Latitudes of the Northern Hemisphere (1959–2003). *Radiocarbon* 46: 1261–1272.
- Levin I, Kromer B, Schmidt M, Sartorius H. 2003. A novel approach for independent budgeting of fossil fuel CO_2 over Europe by $^{14}\text{CO}_2$ observations. *Geophysical Research Letters* 30: 1–5.
- Lotter AF, Birks HJB. 1997. The separation of the influence of nutrients and climate on the varve time-series of baldeggersee, Switzerland. *Aquatic Sciences* 59: 362–375.
- Lotter AF, Merkt J, Sturm M. 1997. Differential sedimentation versus coring artifacts: A comparison of two widely used piston-coring methods.
- MacCarthy P, Malcolm RL, Clapp CE, Bloom PR. 2015. An Introduction to Soil Humic Substances. Pages 1–12 Humic Substances in Soil and Crop Sciences: Selected Readings. Soil Science Society of America, Madison, WI, USA.
- Magnusson Åsa, Stenström K, Skog G, Adliene D, Adlys G, Hellborg R, Olariu A, Zakaria M, Rääf C, Mattsson S. 2004. Levels of ^{14}C in the Terrestrial Environment in the Vicinity of Two European Nuclear Power Plants. *Radiocarbon*.
- Magnusson Å. 2007. C Produced by Nuclear Power Reactors – Generation and Characterization of Gaseous, Liquid and Solid Waste.
- Magnusson Å, Stenström K, Adliene D, Adlys G, Dias C, Rääf C, Skog G, Zakaria M, Mattsson S. 2007. Carbon-14 levels in the vicinity of the Lithuanian nuclear power plant Ignalina. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 259: 530–535.
- Manning MP, Reid RC. 1977. C-H-O Systems in the Presence of an Iron Catalyst. *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development* 16: 358–361.
- Mareddy AR. 2017. Impacts on air environment. *Environmental Impact Assessment*: 171–216.
- Masarik J, Reedy RC. 1995. Terrestrial cosmogenic-nuclide production systematics calculated from numerical simulations. *Earth and Planetary Science Letters* 136: 381–395.
- Mazeika J, Petrosius R, Pukienė R. 2008. Carbon-14 in tree rings and other terrestrial samples in the vicinity of Ignalina Nuclear Power Plant, Lithuania. *Journal of Environmental Radioactivity* 99: 238–247.
- Mažeika J, Petrošius R, Pukienė R. 2008. Carbon-14 in tree rings and other

- terrestrial samples in the vicinity of Ignalina Nuclear Power Plant, Lithuania. *Journal of Environmental Radioactivity* 99: 238–247.
- Melles M, Brigham-Grette J, Minyuk PS, Nowaczyk NR, Wennrich V, DeConto RM, Anderson PM, Andreev AA, Coletti A, Cook TL, Haltia-Hovi E, Kukkonen M, Lozhkin A V., Rosen P, Tarasov P, Vogel H, Wagner B. 2012. 2.8 Million Years of Arctic Climate Change from Lake El'gygytgyn, NE Russia. *Science* 337: 315–320.
- Middleton R. 1984. A review of ion sources for accelerator mass spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 5: 193–199.
- Mingram J, Negendank JFW, Brauer A, Berger D, Hendrich A, Köhler M, Usinger H. 2007. Long cores from small lakes - Recovering up to 100 m-long lake sediment sequences with a high-precision rod-operated piston corer (Usinger-corer). *Journal of Paleolimnology* 37: 517–528.
- Molnár M, Bujtás T, Svingor É, Futó I, Svítlik I. 2007. Monitoring of atmospheric excess ^{14}C around Paks nuclear power plant, Hungary. *Radiocarbon* 49: 1031–1043.
- Mook WG, van der Plicht J. 1999. Reporting ^{14}C Activities and Concentrations. *Radiocarbon* 41: 227–239.
- Moore JJ, Hughen KA, Miller GH, Overpeck JT. 2001. Little Ice Age recorded in summer temperature reconstruction from varved sediments of Donard Lake, Baffin Island, Canada. *Journal of Paleolimnology* 25: 503–517.
- Nagasawa S, Kitagawa H, Nakanishi T, Tanabe S, Hong W. 2013. An approach toward automatic graphitization of CO_2 samples for AMS ^{14}C measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 294: 266–269.
- Nakagawa T, Gotanda K, Haraguchi T, Danhara T, Yonenobu H, Brauer A, Yokoyama Y, Tada R, Takemura K, Staff RA, Payne R, Bronk Ramsey C, Bryant C, Brock F, Schlolaut G, Marshall M, Tarasov P, Lamb H. 2012. SG06, a fully continuous and varved sediment core from Lake Suigetsu, Japan: stratigraphy and potential for improving the radiocarbon calibration model and understanding of late Quaternary climate changes. *Quaternary Science Reviews* 36: 164–176.
- National Electrostatics Corporation. 2009. abc - NEC AMS analysis program Version 7.0.
- Neeb K-H. 1997. The Radiochemistry of Nuclear Power Plants with Light Water Reactors. Page The Radiochemistry of Nuclear Power Plants with Light Water Reactors.
- Němec M, Wacker L, Gäggeler H. 2010a. Optimization of the graphitization process AT AGE-1. *Radiocarbon* 52: 1380–1393.
- Němec M, Wacker L, Hajdas I, Gäggeler H. 2010b. Alternative Methods for Cellulose Preparation for Ams Measurement. *Radiocarbon* 52: 1358–1370.

- Neugebauer I, Brauer A, Schwab MJ, Waldmann ND, Enzel Y, Kitagawa H, Torfstein A, Frank U, Dulski P, Agnon A, Ariztegui D, Ben-Avraham Z, Goldstein SL, Stein M. 2014. Lithology of the long sediment record recovered by the ICDP Dead Sea Deep Drilling Project (DSDDP). *Quaternary Science Reviews* 102: 149–165.
- Nobel PS. 1996. High Productivity of Certain Agronomic CAM Species: 255–265.
- O'Brien K. 1979. Secular variations in the production of cosmogenic isotopes in the Earth's atmosphere. *Journal of Geophysical Research* 84: 423.
- Oeschger H, Alder B, Loosli H, Langway CC, Renaud A. 1966. Radiocarbon dating of ice. *Earth and Planetary Science Letters* 1: 49–54.
- Ojala AEK, Francus P, Zolitschka B, Besonen M, Lamoureux SF. 2012. Characteristics of sedimentary varve chronologies – A review. *Quaternary Science Reviews* 43: 45–60.
- Otlet RL, Fulker MJ, Walker AJ. 1992. Environmental Impact of Atmospheric Carbon-14 Emissions Resulting from the Nuclear Energy Cycle. Pages 519–534 *Radiocarbon After Four Decades*. Springer New York, New York, NY.
- Pabedinskas A, Maceika E, Šapolaitė J, Ežerinskis Ž, Juodis L, Butkus L, Bučinskas L, Remeikis V. 2019. Assessment of the Contamination by 14 C Airborne Releases in the Vicinity of the Ignalina Nuclear Power Plant. *Radiocarbon* 61: 1185–1197.
- Pichler H, Merkel H. 1949. Chemical and thermomagnetic studies on iron catalysts of hydrocarbons.
- Plukienė R, Lagzdina E, Garankin J, Garbaras A, Gudelis A, Germanas D, Plukis A, Remeikis V. 2020. Estimation of the generation of 13C and 14C in the reactor graphite using MCNP6 modelling, isotope ratio mass spectrometry and 14C measurement technique. *International Conference on Physics of Reactors: Transition to a Scalable Nuclear Future, PHYSOR 2020* 2020-March: 2668–2673.
- Plukienė R, Lagzdina E, Juodis L, Plukis A, Puzas A, Gvozdaite R, Remeikis V, Révay Z, Kučera J, Ancius D, Ridikas D. 2018. Investigation of impurities of RBMK graphite by different methods. *Radiocarbon* 60: 1861–1870.
- Povinec P, Šivo A, Ješkovský M, Svetlik I, Richtáriková M, Kaizer J. 2015. Radiocarbon in the atmosphere of the Žilkovce monitoring station of the Bohunice NPP: 25 Years of continuous monthly measurements. *Radiocarbon* 57: 355–362.
- Price GD, von Caemmerer S, Evans JR, Yu JW, Lloyd J, Oja V, Kell P, Harrison K, Gallagher A, Badger MR. 1994. Specific reduction of chloroplast carbonic anhydrase activity by antisense RNA in transgenic tobacco plants has a minor effect on photosynthetic CO₂ assimilation. *Planta* 193: 331–340.
- Purser KH, Liebert RB, Litherland AE, Beukens RP, Gove HE, Bennett CL,

- Clover MR, Sondheim WE. 1977. An attempt to detect stable N- ions from a sputter ion source and some implications of the results for the design of tandems for ultra-sensitive carbon analysis. *Revue de Physique Appliquée* 12: 1487–1492.
- Ramsey CB, Staff RA, Bryant CL, Brock F, Kitagawa H, Plicht J van der, Schlolaut G, Marshall MH, Brauer A, Lamb HF, Payne RL, Tarasov PE, Haraguchi T, Gotanda K, Yonenobu H, Yokoyama Y, Tada R, Nakagawa T. 2012a. A Complete Terrestrial Radiocarbon Record for 11.2 to 52.8 kyr B.P. *Science* 338.
- Ramsey CB, Staff RA, Bryant CL, Brock F, Kitagawa H, Plicht J van der, Schlolaut G, Marshall MH, Brauer A, Lamb HF, Payne RL, Tarasov PE, Nakagawa T, Haraguchi T, Gotanda K, Yonenobu H, Yokoyama Y, Tada R, Nakagawa T. 2012b. A Complete Terrestrial Radiocarbon Record for 11.2 to 52.8 kyr B.P. *Science* 338: 370–375.
- Randsalu-Wendrup L, Conley DJ, Carstensen J, Snowball I, Jessen C, Fritz SC. 2012. Ecological Regime Shifts in Lake Kälksjön, Sweden, in Response to Abrupt Climate Change Around the 8.2 ka Cooling Event. *Ecosystems* 15: 1336–1350.
- Rauch S, Hemond HF, Brabander DJ. 2006. High spatial resolution analysis of lake sediment cores by laser ablation inductively coupled plasma-mass spectrometry (LA-ICP-MS). *Limnology and Oceanography: Methods* 4: 268–274.
- Reimer PJ, Austin WEN, Bard E, Bayliss A, Blackwell PG, Bronk Ramsey C, Butzin M, Cheng H, Edwards RL, Friedrich M, Grootes PM, Guilderson TP, Hajdas I, Heaton TJ, Hogg AG, Hughen KA, Kromer B, Manning SW, Muscheler R, Palmer JG, Pearson C, Van Der Plicht J, Reimer RW, Richards DA, Scott EM, Southon JR, Turney CSM, Wacker L, Adolphi F, Büntgen U, Capano M, Fahrni SM, Fogtmann-Schulz A, Friedrich R, Köhler P, Kudsk S, Miyake F, Olsen J, Reinig F, Sakamoto M, Sookdeo A, Talamo S. 2020. The IntCal20 Northern Hemisphere Radiocarbon Age Calibration Curve (0–55 cal kBP). *Radiocarbon* 62: 725–757.
- Reimer PJ, Bard E, Bayliss A, Beck JW, Blackwell PG, Bronk Ramsey C, Buck CE, Cheng H, Edwards RL, Friedrich M, Grootes PM, Guilderson TP, Haflidason H, Hajdas I, Hatté C, Heaton TJ, Hoffmann DL, Hogg AG, Hughen KA, Kaiser KF, Kromer B, Manning SW, Niu M, Reimer RW, Richards DA, Scott EM, Southon JR, Staff RA, Turney CSM, van der Plicht J. 2013. IntCal13 and Marine13 Radiocarbon Age Calibration Curves 0–50,000 Years cal BP. *Radiocarbon* 55: 1869–1887.
- Reimer PJ, Brown TA, Ron WR. 2004. 2004 by the Arizona Board of Regents on behalf of the University of Arizona. *Radiocarbon* 46: 1299–1304.
- Remeikis V, Grineviciute J, Duškesas G, Juodis L, Plukienė R, Plukis A. 2021. Review of modeling experience during operation and

- decommissioning of RBMK-1500 reactors. II. Radioactive waste management. *Nuclear Engineering and Design* 380.
- Remeikis V, Juodis L, Plukis A, Vyčinas L, Rožkov A, Jasiulionis R. 2012. Indirect assessment of ¹³⁵Cs activity in the ventilation system of the Ignalina NPP RBMK-1500 reactor. *Nuclear Engineering and Design* 242: 420–424.
- Renberg I, Hansson H. 2010. Freeze corer No. 3 for lake sediments. *Journal of Paleolimnology* 44: 731–736.
- Renberg I, Hansson H. 2011. A tripod piston corer for taking a meter-long sediment core with an undisturbed sediment-water interface. *Journal of Paleolimnology* 46: 313–317.
- Sacco A, Reid RC. 1979. Water limitation in the C-H-O system over iron. *AIChE Journal* 25: 839–843.
- Sacco A, Thacker P, Chang TN, Chiang ATS. 1984. The initiation and growth of filamentous carbon from α -iron in H₂, CH₄, H₂O, CO₂, and CO gas mixtures. *Journal of Catalysis* 85: 224–236.
- Salaspils Research Reactor. 2022. .
<https://nucleus.iaea.org/rrdb/#/reactor/technical-data>.
- Santos GM, Fabra M, Laguens AG, Demarchi DA, Southon JR, Taylor RE, George D. 2006. ¹⁴C-AMS as a tool for archaeological investigation: Implications for Human Settlement in South America. *FUNDAMENTOS VII*: 137–159.
- Sauerbrey MA, Juschus O, Gebhardt AC, Wennrich V, Nowaczyk NR, Melles M. 2013. Mass movement deposits in the 3.6 Ma sediment record of Lake El'gygytyn, Far East Russian Arctic. *Climate of the Past* 9: 1949–1967.
- Schellekens J, Buurman P, Kalbitz K, Zomer A van, Vidal-Torrado P, Cerli C, Comans RNJ. 2017. Molecular Features of Humic Acids and Fulvic Acids from Contrasting Environments. *Environmental Science and Technology* 51: 1330–1339.
- Schimmelmann A, Lange CB, Berger WH. 1990. Climatically controlled marker layers in Santa Barbara Basin sediments and fine-scale core-to-core correlation. *Limnology and Oceanography* 35: 165–173.
- Secretariat of the World Nuclear Association. 2021. Nuclear Power in the World Today. <https://www.world-nuclear.org/information-library/current-and-future-generation/nuclear-power-in-the-world-today.aspx>.
- Shanahan TM, Overpeck JT, Beck JW, Wheeler CW, Peck JA, King JW, Scholz CA. 2008. The formation of biogeochemical laminations in Lake Bosumtwi, Ghana, and their usefulness as indicators of past environmental changes. *Journal of Paleolimnology* 40: 339–355.
- Skog G. 2007. The single stage AMS machine at Lund University: Status report. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 259: 1–6.
- Skog G, Rundgren M, Sköld P. 2009. Status of the Single Stage AMS

- machine at Lund University after 4 years of operation. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B* 268: 895–897.
- Slota PJ, Jull AJT, Linick TW, Toolin LJ. 1987. Preparation of Small Samples for 14 C Accelerator Targets by Catalytic Reduction of CO. *Radiocarbon* 29: 303–306.
- Snowball I, Sandgren P. 2002. Geomagnetic field variations in northern Sweden during the Holocene quantified from varved lake sediments and their implications for cosmogenic nuclide production rates: <http://dx.doi.org/10.1191/0959683602hl562rp> 12: 517–530.
- Southon JR, Nelson DE, Vogel JS. 1990. Injection systems for AMS: simultaneous versus sequential. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 52: 370–374.
- Spliethoff HM, Hemond HF. 1996. History of toxic metal discharge to surface waters of the Aberjona Watershed. *Environmental Science and Technology* 30: 121–128.
- Steelink CA. 1985. Implications of elemental characteristics of humic substances. Pages 457–476 G.R. Aiken et al. Humic substances in soil, sediment, and water: Geochemistry, isolation and characterization.
- Stenström K, Erlandsson B, Mattsson S, Thornberg C, Hellborg R, Kiisk M, Persson P, Skog G. 2000. 14C emission from Swedish nuclear power plants and its Effect on the 14C levels in the environment: 1–44.
- Stenström K, Thornberg C, Erlandsson B, Hellborg R, Mattsson S, Persson P. 1998. 14C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and two “clean-air” sites in southernmost Sweden. *Radiocarbon* 40: 433–438.
- Stenstrom K, Thornberg C, Erlandsson B, Hellborg R, Mattsson S, Persson PER. 2017. "14C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and two “clean-air” sites in southernmost Sweden 40: 433–438.
- Stenström KE, Skog G, Georgiadou E, Genberg J, Johansson A. 2011. A guide to radiocarbon units and calculations. Page Lund University, Internal Report.
- Still C, Rastogi B. 2017. What Drives Carbon Isotope Fractionation by the Terrestrial Biosphere? *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences* 122: 3108–3110.
- Stockhecke M, Anselmetti FS, Meydan AF, Odermatt D, Sturm M. 2012. The annual particle cycle in Lake Van (Turkey). *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* 333–334: 148–159.
- Stockhecke M, Sturm M, Brunner I, Schmincke H, Sumita M, Kipfer R, Cukur D, Kwiecien O, Anselmetti FS. 2014. Sedimentary evolution and environmental history of Lake Van (Turkey) over the past 600 000 years. *Sedimentology* 61: 1830–1861.
- Stricht S Van der, Janssens A. 2010. Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing sites in the European union. 2004-2008.

- Stuiver M. 1983. International agreements and the use of the new oxalic acid standard minze. *Radiocarbon* 25: 793–795.
- Stuiver M, Braziunas TF. 1993. Modeling atmospheric to 10,000. Page Radiocarbon.
- Stuiver M, Polach H. 1977a. Discussion Reporting of 14C Data. *Radiocarbon* 19: 355–363.
- Stuiver M, Polach HA. 1977b. Discussion Reporting of 14C Data. *Radiocarbon* 19: 355–363.
- Suess HE. 1965. Secular variations of the cosmic-ray-produced carbon 14 in the atmosphere and their interpretations. *Journal of Geophysical Research* 70: 5937–5952.
- Sulzman EW. 2000. The Carbon Cycle. Page Understanding Global Change: Earth Science and Human Impacts.
- Sun X, Yang X, Su Y, Teng M, Liao J, Niu A, Liang X. 2015. Morphology improvement of sandblasted and acid-etched titanium surface and osteoblast attachment promotion by hydroxyapatite coating. *Xiyou Jinshu Cailiao Yu Gongcheng/Rare Metal Materials and Engineering* 44: 67–72.
- Svetlik I, Fejgl M, Turek K, Michalek V, Tomaskova L. 2012. 14C studies in the vicinity of the Czech NPPs. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 292: 689–695.
- Synal H-A. 2013. Developments in accelerator mass spectrometry. *International Journal of Mass Spectrometry* 349–350: 192–202.
- Taylor RE. 1987. Radiocarbon dating archeological perspective.
- Taylor RE. 1992. Radiocarbon After Four Decades.
- Taylor RE, Bar-Yosef O. 2016. Radiocarbon Dating, Second Edition.
- Tenu A, Davidescu F, Cuculeanu V. 2002. Tropospheric CO₂ in Romania: concentration and isotopic composition measurements. *International Atomic Energy Agency*.
- Thykier-Nielsen S, Deme S, Mikkelsen T. 1999. Description of the atmospheric dispersion module RIMPUFF: 1–58.
- Turnbull J, Rayner P, Miller J, Naegler T, Ciais P, Cozic A. 2009. On the use of ¹⁴CO₂ as a tracer for fossil fuel CO₂: Quantifying uncertainties using an atmospheric transport model. *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 114: 1–13.
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. 2000. UNSCEAR 2000 Report Vol I: Sources and effects of ionizing radiation. Annex B. United Nations, New York, New York.
- UNSCEAR. 2000. Sources and Effects of Ionizing Radiation. New York, United Nations.
- VATESI. 2009. Nuclear energy in Lithuania: Nuclear safety. Inspectorate of nuclear power safety, Lithuania.
- Verkouteren RM, Klinedinst DB, Currie L a. 1997. Iron-Manganese System for Preparation of Radiocarbon Ams Targets: Characterization of Procedural Chemical-Isotopic Blanks and Fractionation. *Radiocarbon*

- 39: 269–283.
- Vogel JS. 1992. Rapid Production of Graphite Without Contamination for Biomedical AMS. *Radiocarbon* 34: 344–350.
- Vogel JS, Nelson DE, Southon JR. 1987a. ^{14}C Background Levels in An Accelerator Mass Spectrometry System. *Radiocarbon* 29: 323–333.
- Vogel JS, Southon JR, Nelson DE. 1987b. Catalyst and binder effects in the use of filamentous graphite for AMS. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B* 29: 50–56.
- Vogel JS, Southon JR, Nelson DE, Brown TA. 1984. Performance of catalytically condensed carbon for use in accelerator mass spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 5: 289–293.
- Wacker L, Němec M, Bourquin J. 2010. A revolutionary graphitisation system: Fully automated, compact and simple. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 268: 931–934.
- Wagner T, Magill CR, Herrle JO. 2018. Carbon isotopes. <https://www.ldeo.columbia.edu/~martins/isohydro/carbon1.html>.
- Walker J. 2006. Chapter 2: Basic wood chemistry and cell wall ultrastructure.
- Way DA. 2013. Temperature response of photosynthesis in C_3 , C_4 , and CAM plants: Temperature acclimation and temperature adaptation. Temperature response of photosynthesis in C_3 , C_4 , and CAM plants: temperature acclimation and temperature adaptation.
- Wehrli B, Lotter AF, Schaller T, Sturm M. 1997. High-resolution varve studies in Baldeggersee (Switzerland): Project overview and limnological background data. *Aquatic Sciences* 59: 285–294.
- Wetzel RG. 2001. Limnology: Lake and River Ecosystems. *Academic Press*: 1006.
- Wright HE, Mann JDH, Glaser PH. 1984. Piston corers for peat and lake sediments. *Ecology* 65: 657–659.
- Xu S, Cook GT, Cresswell AJ, Dunbar E, Freeman SPHT, Hastie H, Hou X, Jacobsson P, Naysmith P, Sanderson DCW. 2015. Radiocarbon concentration in modern tree rings from Fukushima, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity* 146: 67–72.
- Xu S, Cook GT, Cresswell AJ, Dunbar E, Freeman SPHT, Hastie H, Hou X, Jacobsson P, Naysmith P, Sanderson DCW, Tripney BG, Yamaguchi K. 2016. ^{14}C levels in the vicinity of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant prior to the 2011 accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 157: 90–96.
- Xu S, Zheng G. 2003. Variations in radiocarbon ages of various organic fractions in core sediments from Erhai Lake, SW China. *Geochemical Journal* 37: 135–144.
- Xu X, Trumbore SE, Zheng S, Southon JR, McDuffee KE, Luttgen M, Liu JC. 2007. Modifying a sealed tube zinc reduction method for

- preparation of AMS graphite targets: Reducing background and attaining high precision. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 259: 320–329.
- Yamori W, Hikosaka K, Way DA. 2014, February. Temperature response of photosynthesis in C3, C4, and CAM plants: Temperature acclimation and temperature adaptation.
- Yim M-S, Caron F. 2006a. Life cycle and management of carbon-14 from nuclear power generation. *Progress in Nuclear Energy* 48: 2–36.
- Yim M-S, Caron F. 2006b. Life cycle and management of carbon-14 from nuclear power generation. *Progress in Nuclear Energy* 48: 2–36.
- Yoneda M, Shibata Y, Tanaka A, Uehiro T, Morita M, Uchida M, Kobayashi T, Kobayashi C, Suzuki R, Miyamoto K, Hancock B, Dibden C, Edmonds JS. 2004. AMS14C measurement and preparative techniques at NIES-TERRA. Pages 116–123 *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*.
- Zazzeri G, Yeomans EA, Graven HD. 2018. Global and regional emissions of radiocarbon from nuclear power plants from 1972 to 2016. *Radiocarbon* 60: 1068–1081.
- Zolitschka B, Brauer A, Negendank JFW, Stockhausen H, Lang A. 2000. Annually dated late Weichselian continental paleoclimate record from the Eifel, Germany. *Geology* 28: 783–786.
- Zolitschka B, Francus P, Ojala AEK, Schimmelmann A. 2015. Varves in lake sediments – a review. *Quaternary Science Reviews* 117: 1–41.

SUMMARY

6.1. Introduction

The technological progress of mankind and the intensive development of industry, agriculture, transport and other areas of production are inseparable from the growing energy needs. The energy industry, on the other hand, inevitably creates problems with adverse effects on the environment and man. Natural reserves of fossil fuels are depleting, and products of combustion that are harmful to the environment and to humans accumulate in the atmosphere and other parts of the environment. In recent years, the harmful effects of global warming have clearly been observed as a result of the accumulation of greenhouse gases (carbon dioxide, sulfur and nitrogen oxides, etc.). These circumstances will sooner or later lead to a return to nuclear power, the main advantages of which are very clean electricity generation, low fuel consumption (1 fuel tablet = 1 ton of carbon) and little high-level waste, and the reactor requires less space compared to wind or solar power plants.

However, even the most advanced nuclear technologies require an assessment of the risks posed by operations or emergencies. It is necessary to follow the latest scientific knowledge in nuclear engineering, nuclear and radiation safety. It is important to have a deep understanding of reactor processes and how to prevent such events, then we can have a sustainable environment and a safe long-term source of energy.

Research addressing the technological challenges of radiation safety, characterization, management and storage of radioactive waste is becoming especially important and promising. New scientific knowledge on the accumulation of radionuclides in operational waste, power plant structures and equipment will allow the development of safe decommissioning schemes and radioactive waste management technologies. The relevance of radiological research is determined by the need to know the extent of the effects of radionuclides entering the environment on the environment and humans, as well as the accumulation and dispersion processes in the biosphere. This knowledge about the behavior of technogenic radionuclides in the protective barrier systems and geosphere components of power plant and radioactive waste storage facilities is necessary and important in ensuring the radiation safety of this and future generations of mankind.

Radiocarbon (^{14}C) is one of the natural radioactive isotopes ($T_{1/2} = 5730 \pm 40$ years). ^{14}C is formed in the upper atmosphere by the interaction of the nitrogen nucleus with cosmic neutrons slowed by the atmosphere. It is

estimated that there are about 8,500 PBq (950 tons) of radioactive carbon in the earth and about 140 PBq (840 kg) in the atmosphere. Another significant source of radiocarbon is the experiments of nuclear weapons in the atmosphere, especially thermonuclear weapons. It has been experimentally estimated that about 220 PBq (1.3 tons) of carbon was released into the atmosphere during the tests period carried out between 1945 and 1964. Nuclear reactors, albeit on a smaller scale, are an important anthropogenic source of radiocarbon pollution not only locally but also globally.

Radiocarbon in biota is a radioecologically important radionuclide. Radiocarbon dioxide ($^{14}\text{CO}_2$) in the atmosphere, together with stable carbon dioxide, is involved in the process of photosynthesis and enters living organisms through food chains, where it becomes a significant radionuclide of internal radiation. Therefore, new scientific knowledge on the management of carbon emissions from nuclear energy, the operation of research reactors and other nuclear installations, and the management of radioactive waste during both safety and emergency situations is becoming particularly relevant. It is important to reveal and experimentally substantiate the mechanisms of dispersion and accumulation of hazardous radionuclides in the environment and of their entry into the human body, as well as to assess the risk in case of internal exposure.

Aim and tasks

The aim of this work is to experimentally study and by modeling the influence of nuclear power plant technological processes to assess the change of radiocarbon balance in environment. During the whole Ignalina NPP operation period, develop a model to assess radiocarbon emissions, dispersion and accumulation in the environment and to assess radiological impact on the environment and residents. In addition the radiocarbon dating methodology is applied to study hydrological and biological processes in the environment. The following objectives are set for the implementation of these goals:

1. To measure the change in the annual concentration of radiocarbon from the beginning of the operation of the Ignalina NPP to the present day in the tree rings from the background area and from the impact zone of the Ignalina NPP. Evaluate the results of the measurement of background samples with the annual course of the change of radiocarbon concentration in the northern hemisphere as presented in the literature. To assess the representativeness of samples, graphitization and other chemical processes, and the

influence of the accelerator mass spectrometer on the measurement capabilities and accuracy.

2. Collect data on the power change of the Ignalina nuclear power plant and other technological processes related to radiocarbon emissions from the power plant to the environment during the periods of operation and decommissioning. Determine the impact of reactor modernization works on ^{14}C emissions from nuclear power plants and possible causes.
3. Assess the possible anthropogenic impact on the local population created by the operation of the Ignalina NPP and other processes and to calculate the additional effective radiation dose.
4. Create a model of radiocarbon dispersion in the environment of Ignalina NPP, taking into account the influence of atmospheric dynamics on the dispersion processes in the atmosphere. Investigate the possibility of calculating the annual emissions of radiocarbon to the environment of the nuclear power plant and to assess the increase in the radiation dose to the population.
5. To assess the applicability of ^{14}C specific activity measurements in bioindicators to the evaluation of other radionuclide emissions from a nuclear facility, as well as the possibilities of applying the method to the characterization of the pollution source.
6. Take samples of the bottom sediment column of Lake Drūkšiai, measure the vertical profile of the specific activity of radioactive carbon in the sediments and study the ^{14}C cycle in the water-bottom sediment ecosystem of Lake Drūkšiai, in order to retrospectively characterize the liquid wastewater from the NPP.

Novelty

The dispersion of ^{14}C released into the environment during the NPP operation and the annual course of radiocarbon accumulation in the biota determined by photosynthesis were comprehensively investigated, a map of radiocarbon accumulation in trees was created, and the annual doses delivered to population due to contamination by technogenic carbon from Ignalina NPP within 10 km was estimated. A new indirect method for predicting the emission and dispersion of technogenic radionuclides in the environment of a nuclear facility has been proposed, verified and experimentally proved.

Defensive statements

1. Changes in the concentration of radiocarbon exceeding the background values observed in tree rings within the 10 km zone around Ignalina NPP are determined by annual ^{14}C emissions from the power plant and qualitatively reflect reactor power - energy production and technological maintenance, repair and dismantling work periods during the decommissioning.
2. During the entire period of Ignalina NPP operation, the exposure of the surrounding population (10 km zone) caused by RBMK reactor ^{14}C emissions to the atmosphere is only 0.03 % of the exposure dose generated by natural radiation sources.
3. Spatial distribution of ^{14}C activity in the vicinity of the source well reflects the mechanisms of dispersal of radiologically important anthropogenic radionuclides in the environment. This can be used to estimate the annual radiocarbon emissions during the operation of the facility by the nuclide vector method as a key radionuclide for preliminary estimation of difficult-to-measure nuclides.

6.2. Materials and methods

6.3. Radiocarbon

The analysis of ^{14}C activity in the environment reveals its changes which can be correlated with the influence of the natural carbon cycle processes and anthropogenic activity. Radiocarbon is primarily produced in upper layers of the atmosphere by cosmic ray activation of nitrogen atoms. Production of atmospheric radiocarbon is counteracted by the slow removal of the radioactive decay (half-life is 5730 years) and the rapid processes of the global carbon cycle due to the CO_2 exchanges. CO_2 is removed by the oceans due to chemical transformation into the carbonates and by the capture and incorporation into organic materials of the $^{14}\text{CO}_2$ by the autotrophic organisms, mainly plants. These processes are responsible for the fast removal of $^{14}\text{CO}_2$ excess (Stuiver and Polach 1977a, Stuiver 1983) from the atmosphere after the nuclear weapon tests of 1950's and 1960's.

Nuclear power plants (NPP) are also sources of ^{14}C release to the environment, along with other radionuclides, mostly of noble gasses, iodine, and tritium. The ^{14}C in nuclear reactors is generated mainly by neutron reactions with ^{17}O , ^{14}N and ^{13}C isotopes present in the reactor core, moderator and coolant. In boiling water reactors (BWR) and reactors with

graphite moderator (HTGR, AGR, Magnox, RBMK), dominant ^{14}C releases are in the form of carbon dioxide (Gaiko et al. 1985, Stenström et al. 2000, Yim and Caron 2006a, Mažeika et al. 2008). Once generated, the gaseous chemical compounds containing ^{14}C are released to the environment either through special venting equipment during the operation or during reactor shutdowns. In particular, RBMK type reactors have ejectors for the separation and the release of gaseous products from the turbine condensers to the ventilation system and finally to the atmosphere (Remeikis et al. 2012).

Although the ventilation system of the RBMK reactors is equipped with special filters (aerosol, activated carbon, zeolite absorber and mechanical filters), some fraction of the ^{14}C is released to the environment. e.g., the total ^{14}C release to the environment was $2.2 \cdot 10^{10}$ Bq for the year 2008, 80 % of this was released from the Unit 2 reactor building 101/2 as an airborne discharge when Unit 2 was still in operation (VATESI 2009).

6.4. Anthropogenic radiocarbon sources

The absolute amount of radiocarbon in the atmosphere and biosphere depends not only on the natural formation of the ^{14}C isotope but also on the effects of anthropogenic (human-induced) sources. These sources can have both global and local effects on ^{14}C specific activity in air. Over the last two centuries, the specific activity of ^{14}C has been and continues to be influenced by the active combustion of fossil fuels known as the Suess effect.

Currently, the only anthropogenic sources of radiocarbon are the objects of the nuclear power industry. As of 2020, 441 nuclear reactors are in operation, producing 10.1% of the total energy consumed (Secretariat of the World Nuclear Association 2021). Since radiocarbon is a long lived radionuclide and is easily assimilated into living organism, all ^{14}C emissions and sources are investigated and monitored. Anthropogenic ^{14}C generation contributes to the total yearly radiation dose, so it represents a potential health hazard and additional exposure for future generations. Recent studies suggest that the $^{14}\text{CO}_2$ emissions from anthropogenic sources is about 135 TBq per year (Zazzeri et al. 2018). ^{14}C emissions depend on the design of the nuclear facility and are different for each type of nuclear reactor (UNSCEAR 2000). Spent fuel (SNF) reprocessing facilities do not directly generate ^{14}C , but are important sources of anthropogenic ^{14}C . Nuclear power industry is considered to be a major anthropogenic ^{14}C producer. This ^{14}C production has an impact on a local scale (Pabedinskas et al. 2019) and reduced effect on global radiocarbon specific activity. More than 400 nuclear objects

worldwide produce anthropogenic radiocarbon mainly through neutron-induced reactions with nitrogen, oxygen and carbon isotopes. Reactor construction components, fuel rods, coolant or moderator contain mentioned radioactive isotopes, therefore ^{14}C production and releases depend on the reactor type (IAEA 2004). The most common reactor types are light water reactors and they are separated in three segments: Boiling Water Reactors (BWRs), Pressurized Water Reactors (PWRs) and Supercritical Water Reactors (SCWR). All three reactor types use water as a neutron moderator and as coolant. PWR design reactors release mostly produced ^{14}C in the CH_4 molecules, therefore this molecule is not able to enter food chains and to cause additional dose. Contrarily from BWRs, RBMKs ^{14}C escapes in the form of $^{14}\text{CO}_2$ and is easily assimilated by the surrounding flora (UNSCEAR 2000). Pressurized heavy water reactors (PHWR) like CANDU also produce ^{14}C in the form of CO_2 (UNSCEAR 2000).

Thus, studies of the biosphere and hydrosphere around nuclear facilities show that, depending on the design, construction, operation, and electrical power of a nuclear facility, a unique $^{14}\text{CO}_2$ pollution is generated for each nuclear facility. The biosphere has extremely useful properties for capturing this contamination and enables the tracking, prediction and evaluation of contamination pathways from a nuclear facility, allowing the use of the ^{14}C isotope as a marker to monitor the spread of other radionuclides. It should be noted that during normal operation of a nuclear facility, ^{14}C emissions do not pose a significant risk to the surrounding population and biosphere.

6.5. Bioindicators

The release of ^{14}C can be confirmed by tree-ring analysis of the biological material samples collected from the vicinity of a NPP, as the slight increase of $^{14}\text{CO}_2$ concentration in the air is recorded as a pattern in the tree rings due to photosynthesis process and incorporation of $^{14}\text{CO}_2$ into cellulose matrix of tree wood. The airborne releases are responsible for the slight increase of the ^{14}C concentration, which can be detected with modern measurement equipment, mainly by accelerator mass spectrometry (AMS). This biological analogy is similar to time capsules and could be considered as bio indication material for radiocarbon research.

The formed carbon isotope usually reacts with the oxygen in the atmosphere to form the $^{14}\text{CO}_2$ molecule, which is incorporated into the global carbon cycle. In the carbon cycle, CO_2 gas can be consumed by the photosynthetic processes of autotrophic organisms or incorporated into

physical processes such as dissolution in water, evaporation, rain, or sediment formation. In $^{14}\text{CO}_2$ molecules, radiocarbon is involved in the same physical, chemical, and biological processes as $^{12/13}\text{CO}_2$ and is therefore inseparable from stable carbon isotopes in its basic chemical properties (Key 2001). Radiocarbon enters biota through photosynthesis, this process happens in atmospheric and aquatic reservoirs. CO_2 is incorporated in to the plant and represents the atmospheric carbon isotopic ratio. There are different ways plants incorporate CO_2 and this involves fractionation which could be calculated by measuring stable ^{12}C and ^{13}C isotope ratios.

Radiocarbon produced in nuclear objects acts and enters all biological processes similar to natural radiocarbon. This is the reason why natural and anthropogenic ^{14}C is inseparable. Nuclear bomb tests produced the spread of radiocarbon concentrations around the globe, thus contaminating ocean and terrestrial biospheres. This process was global and impacted both Earth's hemispheres similarly. Contrarily, radiocarbon emitted from nuclear objects is known to be local in effect (Pabedinskas et al. 2019).

In the last few decades many similar research was performed in various NPP vicinities, e.g., in Žilkovce (monitoring station situated 5 km away from Bohunice NPP) $\Delta^{14}\text{C}$ was measured up to 300‰ (130 pMC), however near Dukovany NPP (Czech Republic) this was negligible resulting in 5‰ (0.5 pMC) increase in $\Delta^{14}\text{C}$ (Svetlik et al. 2012, Povinec et al. 2015). A slight increase was also observed at the Barseback nuclear power plant (Sweden) and the vicinity of the Paks nuclear power plant (Hungary) (Stenström et al. 1998, Janovics et al. 2013b). S. Xu et al. at Okuma location near FDNPP recorded higher values of ^{14}C specific activity in tree samples, reaching a maximum of 35,8 $\Delta\text{Bqkg}^{-1}\text{C}$ (15,48 ΔpMC) in 2000 compared with background location. (Xu et al. 2016).

^{14}C is a long-lived radionuclide, therefore it should be measured and be tracked continually, especially in the urban regions. Ignalina NPP was built in a distant location far from large cities. But when the power plant was started to be built, just part of the local residents were evicted from the site. Just less than 3 km west from Ignalina NPP local residents' gardens were left intact and vegetable growing for food was continued to be allowed. This specific situation allowed the incorporation of the anthropogenic radiocarbon into the food chains of the local population.

6.6. Lake sediments

The accumulation of sediments at the bottom of the lake and the process of pollutant incorporation into the sediments allowed for efficient

and accurate reconstruction of climate pollution events, in rare cases even the entire history of pollution events of the polluted water bodies (Spliethoff and Hemond 1996). Tidal lakes have many similarities with tree rings. This type of lake is characterized by layer-by-layer sedimentation over time. In this way, unique layers of fine and coarse sediments are formed.

Carbon is known to be of organic or inorganic origin in sediments, which may be of local origin or brought into the water body by other means. Substances of allochthonous origin are formed outside a body of water and may contain carbon of various origins and isotopic ratios. Organics of autochthonous origin, meanwhile, reflect the isotopic ratio of fixed dissolved inorganic carbon (DIC) in lake plants, phytoplankton, or macrophytes. It should also be noted that the surface water of the lake is saturated with atmospheric CO₂, which has a ^{14/12}C ratio in balance with the atmosphere, so a dynamic equilibrium between DIC and atmospheric ¹⁴CO₂ is achieved. A large proportion of organic sediments are humic substances that are composed of high molecular weight compounds and are involved in geochemical processes in the formation of lake bottom sediments (Aiken et al. 1985, Kleber and Lehmann 2019)

Because seasonally formed lake bottom sediments are very similar in structure to tree rings and infrequently contain terrestrial microfossils suitable for radiocarbon dating, sediments have become extremely valuable information archives that can help reconstruct terrestrial Δ¹⁴C history.

6.7. Sample collection and chemical preparation

Wood samples

The isotopic analysis of wood rings requires the utmost care to distinguish one wood ring from another, as each ring has a unique carbon isotopic ratio. Extracted samples from the tree trunk are dried and further stored under simple conditions, isolation from the environment is not necessary. For chemical cleaning of samples, the optimal amount of 5 mg of dry wood is required (James H. Speer. 2009, Sun et al. 2015).

The base-acid-base-acid-bleaching (BABAB) method is a modified version of the widely used ABA method with the addition of a bleaching step (Gaudinski et al. 2005). There are two main differences between the BABAB and the ABA methods: First, the BABAB method exposes the sample to alkali, meaning that all substances soluble at higher pH will be removed from the sample. This removes alcohols, phenols and carboxyl groups from the sample. In order to increase the activity of the chemical reaction, the samples can be heated up to 75 °C for 12 hours. After chemical

pretreatment dried samples containing only holocellulose are ready for burning to CO₂ in an elemental analyzer (Némec et al. 2010b).

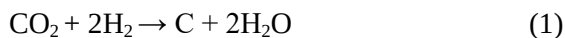
Lake sediment samples

In order to obtain a complete and high-quality history of the sedimentary record of the lake, an undisturbed core of the sedimentary layers must be taken from the intended location in the deepest part of the lake. Gravity drills/saws are used to accomplish this task (Kelts et al. 1986). Extracted core of lake sediments is sliced to 1 cm thick layers and separately frozen until chemical pretreatment.

In order to study the specific activity of ¹⁴C in lake bottom sediments, the humin fractions that make up bottom sediments are selected for ¹⁴C measurements. Thawed and dry-dried sediments are weighed (about 5-10 g) and placed in test tubes for chemical preparation. Main purpose of chemical pretreatment is to extract AS and AIS fractions. Lake sediments chemical pretreatment is explained in more detail by Xu and Zheng (Xu and Zheng 2003).

Carbon graphitization AGE3

Systems in which the sample is combusted and the resulting CO₂ gas is subsequently graphitized by iron catalysis in an H₂ gas environment (Vogel et al. 1984) are widely used to prepare graphite targets for the radiocarbon measurements using an accelerator mass spectrometer. In the AGE-3 system, in order to extract the carbon contained in the sample in the form of CO₂ gas, the samples are burned, produced gas is purified and separated in a gas chromatograph, separating CO₂ from the rest combustion products. The collected CO₂ gas from the elemental analyzer enters the graphitization system, where it is collected in a molecular trap, then transferred to the graphitization reactor and subsequently reduced to graphite on an iron catalyst in a hydrogen environment. This chemical reaction is described by the Bosch equation:



6.8. Radiometric measurements

After the graphitization reaction, samples are pressed into cathodes for accelerator mass spectrometer measurements. Sample graphite is poured through a cylindrical cavity, which is then pressed into the cathode. The

prepared sample target is placed in the ion source of the mass spectrometer. Cesium vapor bombards the metal and graphite target, generating negatively charged ions. The extractor removes the generated ions, thereby creating a bundle of negatively charged carbon ions. This is followed by ion filtering with magnetic fields, separating ions of the required m/z ratio and directing them to the accelerator. In the acceleration stage, the ions are accelerated with a voltage of 240 kV, where the ions that have reached the intended energy enter the molecular dissociator (gas stripper). Here, carbon ions lose electrons, and other interfering molecules are destroyed. Next, the positive carbon ion beam is filtered by magnetic and electric fields up to the Faraday cups, which measure the generated current of ^{12}C and ^{13}C ions, the ^{14}C ions enter a semiconductor detector, where they are recorded (Fifield, 1999).

6.9. Distributions modeling

Local meteorological data was obtained from the archival records of the meteorological station of Ignalina NPP for the years 2004-2017. The data includes the period of operation of Ignalina NPP (1983 12 31 – 2009 12 31) and of closure work records. Atmospheric measurement data was recorded at the meteorological station located at the Ignalina NPP, at the top of the 40 meter high meteorological tower. The database contains 40952 rows of records consisting of: wind direction, average and maximum wind speed, temperature, humidity, atmospheric pressure and precipitation records. This data was systematized according to the periods of active photosynthesis of *Pinus Sylvestris*, and were later used to create wind roses by modeling the distribution of ^{14}C concentration with a Gaussian model at the Ignalina NPP in each of the years 2004 - 2017.

The integrated volumetric activity of the ^{14}C radionuclide in the air ($\text{Bq}\cdot\text{h}/\text{m}^3$) at the point of interest is calculated using the Gaussian scattering model (Figure 1). When solving the inverse diffusion problem, the ^{14}C transfer coefficient in the air TF_{air} (s/m^3) was estimated, reflecting how much radiocarbon emitted from the NPP was diluted on average during the research period at the point of tree growth (depending on the actual meteorological conditions during the period, the direction of the area and the distance from the NPP). The parameter shows the average annual air volume concentration ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) at the point of growth of the tree at the unit rate of release of radioactive carbon activity $q = 1 \text{ Bq}\cdot\text{s}^{-1}$.

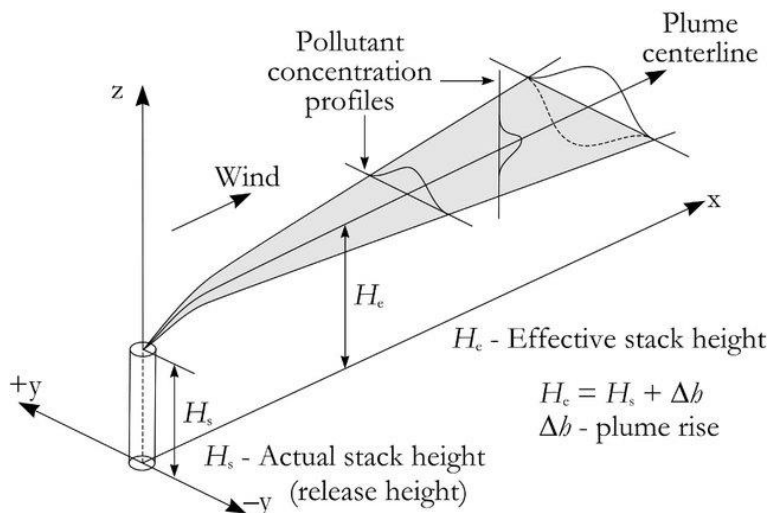


Figure 1. Gaussian plume modeling principals and main variables.

6.10. Sampling sites

In order to accurately assess the change in the specific activity of radiocarbon in the biosphere around the nuclear facility, it is important to choose the most suitable sample collection sites and the background areas. Ignalina NPP is located in northeastern Lithuania, near the border with Belarus and Latvia, by Lake Drūkšiai. Samples have been collected since 2015 spring to autumn 2020. Figure 2 shows all sampling locations around the NPP. Figure 3 presents a map of the background area of Vaikšteniai. The background area is 172 km away from the NPP, and there are no other nuclear facilities nearby, which ensures that there will be no anthropogenic pollution. In total, more than 100 pine (*Pinus Sylvestris*) core samples were taken.

The N1 and N1-2 sampling sites were chosen as close as possible to the Ignalina NPP, in a wooded area with coordinates: 55.618251 longitude and 26.584753 latitude (see Figure 2). The most important requirement of the N1 area is that the sampling site is located in the dominant wind direction from the NPP. Other sampling sites N2, E1, E2, SE, S1, W1 and W2 are selected around the NPP to cover various directions and distances. Lake bottom sediment collection started in the spring of 2019. Bottom sediments were collected in the deepest part of the lake (coordinates: 55.647262° longitude 26.583685° latitude) with a specially adapted gravity sampler.

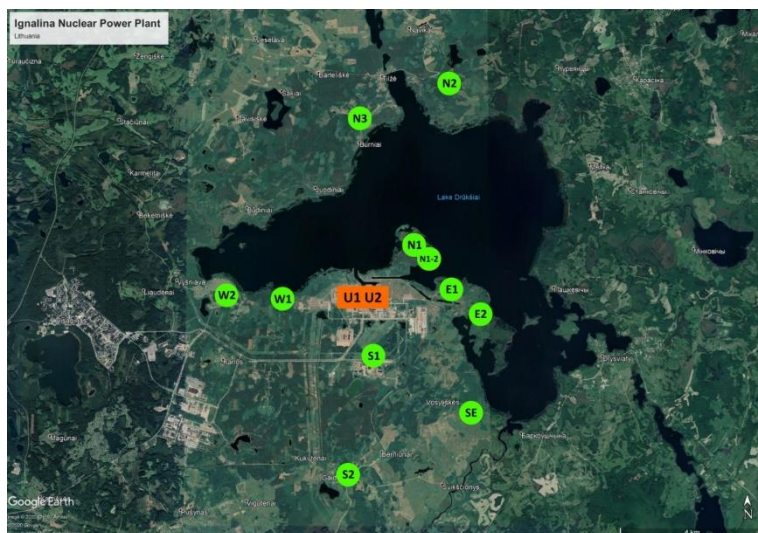


Figure 2. Ignalina nuclear power plant (power units - U1 and U2) and sample collection sites in the region (N1; N1-2; N2; N3; E1; E2; SE; S1; S2; W1; W2).

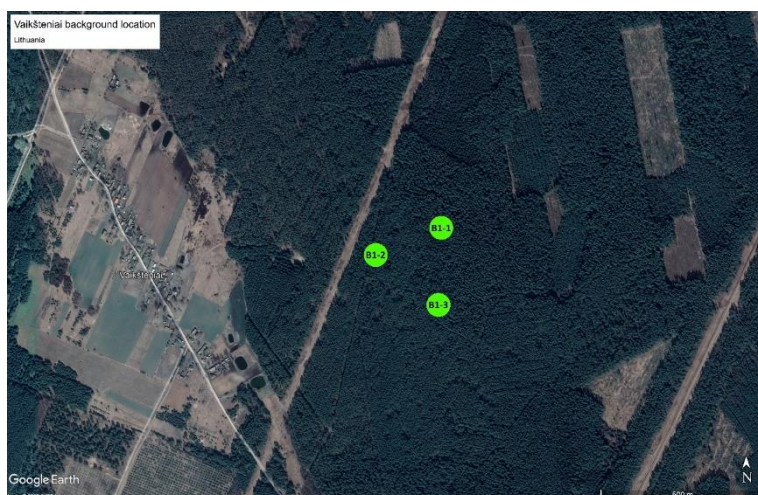


Figure 3. Background area – Vaikšeniai (54.467332°; 24.777268° Trakai district).

Samples of the background area B1-1, B1-2, B1-3 B1-1 (coordinates: longitude 54.469166° and latitude 24.778080°) were collected from 3 different trees at a distance of 165 km from Ignalina NPP (Vaikšeniai) and the tree rings from 1 tree near NPP were used, corresponding to the time period before the start of the power plant's

operation. Together, these ^{14}C measurement results were grouped together, reconstructing background levels from 1955 to 2019.

Table 1. Sampling sites of the study area and the background area.

Site ID	Distance from Ignalina NPP	Sector	Wind direction from Ignalina NPP	Coordinates
Study area (surroundings of the Ignalina nuclear power plant)				
N1	1.9 km	45°	NE	55.618251° 26.584753°
N1-2	1.9 km	45°	NE	55.618251° 26.584753°
N2	6.6 km	22,5°	NNE	55.659993° 26.597464°
E1	2.4 km	90°	E	55.605329° 26.600069°
E2	3.0 km	90°	E	55.595102° 26.614026°
SE	4.4 km	140°	SE	55.574714° 26.608320°
S1	1.8 km	180°	S	55.588263° 26.564238°
S2	5.1 km	180°	S	55.559276° 26.554338°
W1	2.6 km	270°	W	55.603038° 26.527107°
W2	4.0 km	270°	W	55.604167° 26.499578°
Background location (Vaikšteniai)				
B1-1	170 km	-	-	54.469166° 24.778080°
B1-2	170 km	-	-	54.468219° 24.775070°
B1-3	170 km	-	-	54.466976° 24.778174°

6.11. Results

The discussion of the results presents the data obtained during the research, calculations and their analysis. This chapter will discuss the results of ^{14}C specific activity measurements in the background area, the territory of the Ignalina Nuclear Power Plant and the territory of the Salaspils scientific nuclear reactor. Measurements of ^{14}C specific activity in tree rings made it possible to establish the response of biota to the impact of a nuclear object on ^{14}C dispersion in the region and to perform unique model calculations of radiocarbon dispersion. Thanks to the model, it was estimated what dose of ionizing radiation the inhabitants of the vicinity of the nuclear power plant could receive through the food chain.

6.12. Radiocarbon in the vicinity of Ignalina NPP

Assembled data points provide a deeper insight into the effects of Ignalina NPP. Background measurements in comparison with other team research data match with high accuracy ($R = 0.997$) proving local effect of Ignalina NPP (Mazeika et al. 2008, Hua et al. 2013, Reimer et al. 2020). Data collected from the nearest sampling site location N1 from Ignalina NPP is represented in picture 4. Analyzing N1 data, the time span from 1973 to 1983 shows possible anthropogenic Ignalina NPP effects to local ^{14}C balance. Data points are matching in 1σ interval. The Ignalina NPP effects are clearly visible from the beginning of power plant exploitation in figure 4.

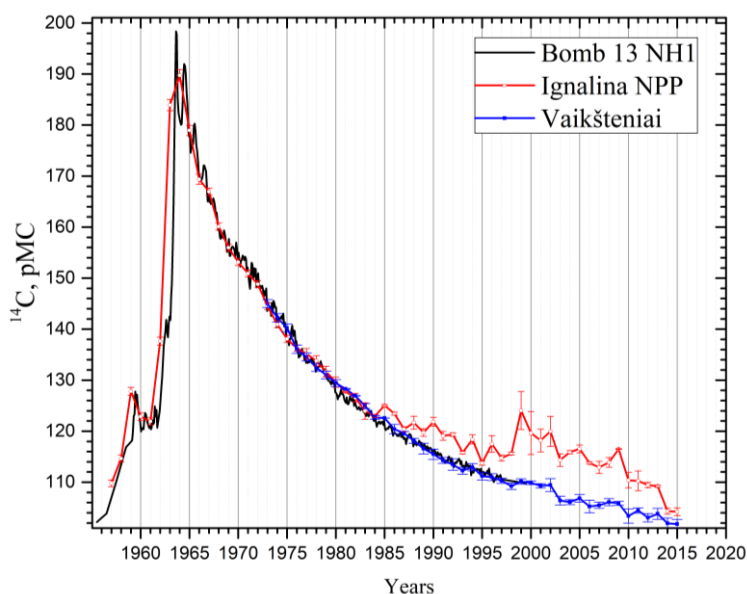


Figure 4. Measurement results of ^{14}C specific activity in *Pinus Sylvestris* tree rings from the background area and the area affected by the Ignalina nuclear power plant compared with the northern hemisphere ^{14}C specific activity in the atmosphere from 1955 to 2015. The red line represents the ^{14}C specific activity of the area affected by the Ignalina NPP, the blue line represents the ^{14}C specific activity of the background area of Vaikšteniai.

In figure 5, the operational period of Ignalina NPP from 1983 to 2009 is depicted in more detail. During the entire period, an increase in the specific activity of ^{14}C is observed in the NPP impact zone (N1). During the period 1983 - 1994, the change in ^{14}C specific activity was not significant. During the entire period the average change in ^{14}C is about 3 pMC and the

maximum value is 6 pMC. These ^{14}C specific activity measurements agree with the data published by Mazeika (Mazeika et al. 2008). When the first Ignalina NPP power unit started operating in 1983 and a few years later the second one (1987), a relatively small recording of ^{14}C in tree ring samples was observed. This could have been due to the peculiarities of NPP operation, for example, during the first year of operation of the NPP, the loaded nuclear fuel was not changed. In 1989 an increase in the specific activity of ^{14}C was observed, due to the fact that two power units were already in operation. In the period between 1989 and 1997, the change in ^{14}C remained stable but a sudden increase occurred in 1999 when the specific activity of ^{14}C more than doubled. Such an increase in the specific activity of ^{14}C lasts until both energy blocks are turned off. During this period, the ^{14}C specific activity exceeded background by 7 pMC on average, with a maximum change of 15 pMC. Since 2010, the specific activity of ^{14}C has decreased and was on average 5 pMC higher than background. Such persistence of pollution may have been due to active Ignalina NPP decommissioning works. From 2014 to 2020, the specific activity of ^{14}C decreased even more and approached background levels.

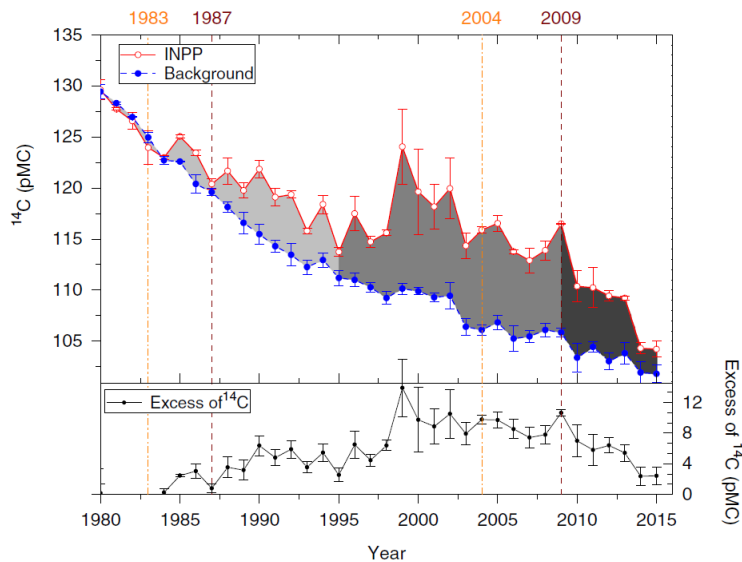


Figure 5. The results of measuring ^{14}C specific activity in pine tree rings in the area affected by the Ignalina NPP (N1) before, during and after the operation of the power plant.

Regarding the changes in radiocarbon emissions from Ignalina NPP, the time period of nuclear object exploitation could be divided into three time periods: I - from 1983 to 1997, II - from 1998 to 2009, III - from 2010 to 2015. Long-term parameters and statistics of electricity production were used in order to investigate the relationship between ^{14}C emissions and the amount of electricity produced by the Ignalina NPP in more detail. The data was compared with the change in ^{14}C specific activity of tree rings. It can be noted that the change of produced electricity and ^{14}C specific activity correlates in the first period (1983 - 1995). The calculated correlation coefficient is relatively high ($r = 0.8$). However, the correlation coefficient calculated during the following period, on the contrary, is extremely low ($r = 0.1$), which clearly indicates an additional source of ^{14}C in the area, whose ^{14}C air emissions do not correlate with produced electricity. From the first period, assuming that the data correlation reaches 80%, it is possible to calculate and extrapolate the theoretical excess of ^{14}C emitted into the environment by the power plant for the entire second period. Then the impact of the secondary source and ^{14}C emissions can be more accurately assessed. The reason for the significant increase in ^{14}C emissions from NPP may be the safety improvement projects, started in 1998, during which the fuel and control channels of power units were renewed. The results are shown in Fig. 6.

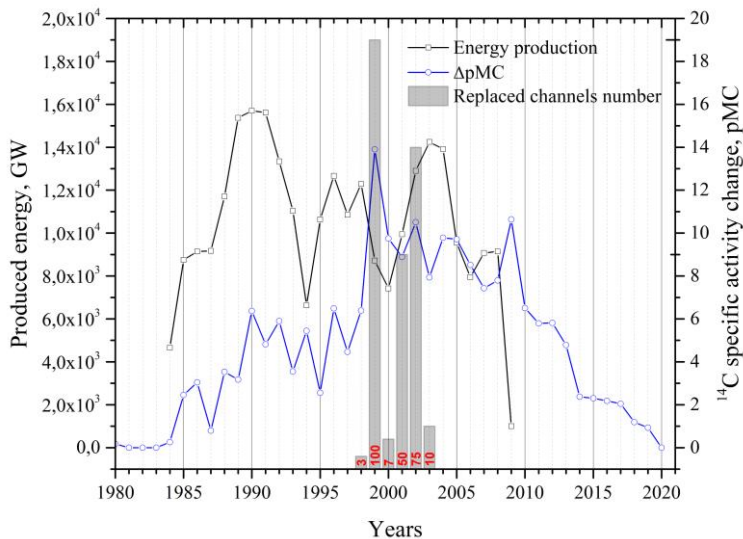


Figure 6. Analysis of the correlation between the electricity produced by the Ignalina NPP and the service work performed together with the difference between the calculated ^{14}C excess.

In 2019, ^{14}C specific activity measurements were carried out from tree ring samples collected near the Salaspils scientific nuclear reactor building in Latvia. After applying identical sample extraction and preparation methods, the ^{14}C measurements of *Pinus Sylvestris* cellulose were performed, covering the entire period of operation of the scientific facility from 1961 to 1998. The results of the study are presented in the picture below (fig. 7).

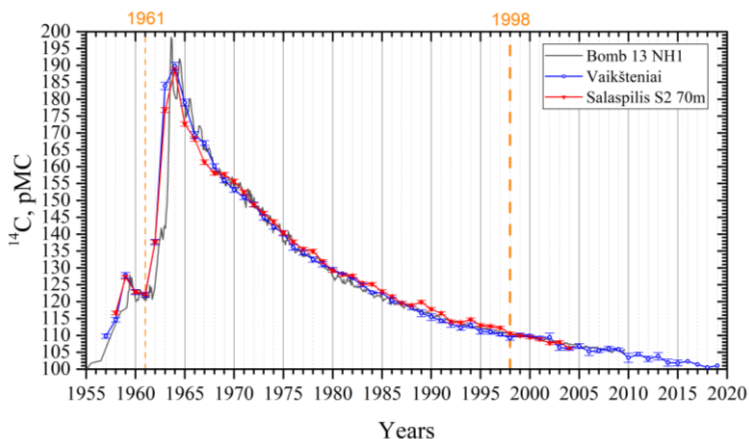


Figure 7. Measurement results of ^{14}C specific activity in *Pinus Sylvestris* tree rings from the background area and the area of the Salaspils scientific reactor. The results are compared with the Northern Hemisphere ^{14}C specific activity in the atmosphere from 1955 to 2015.

This highly sensitive research method shows that the analysis of ^{14}C activity in tree rings can be widely applied to environmental impact assessment of various nuclear facilities. This provides an opportunity to assess the potential impact on the environment even after decommissioning. From the obtained results, it can be stated that the Salaspils scientific nuclear reactor did not cause a significant increase of ^{14}C in the environment and was safe in terms of ^{14}C pollution.

6.13. Atmospheric modeling of local ^{14}C distribution

In order to independently assess the affected area and the size of the impact, the aim was to apply the classical Gaussian model of gas dispersion in the atmosphere. The dispersion of gases emitted from the Ignalina NPP stack under different stability classes of the Pasquill atmosphere with

characteristic meteorological parameters and were modeled using the HotSpot V3.0 program. Based on the dependences of the distance from the source and the height above the ground, the integrated spatial distribution of specific air activity was calculated for a hypothetical gas cloud emitted from a 150-meter-high NPP ventilation stack.

The annual (n) integrated activity, at any distance x from Ignalina NPP in sector j , located $z=15$ m above the ground and located in the central line of the emission cloud $y=0$, can be estimated by the formula:

$$C_{sectorj,n}(x) = \frac{1}{2\pi\sigma_y(x)\sigma_z(x)} \sum_{i=1}^N \frac{Q_{i,n}}{u_{i \rightarrow sectorj,n}} \left\{ \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{z-H}{\sigma_z(x)} \right)^2 \right] + \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{z+H}{\sigma_z(x)} \right)^2 \right] \right\} \quad (43)$$

According to the Gaussian model, the activity varies with distance and is unique for each class, so the actual activity ratios for N1/N2 and W1/W2 points will depend on the corresponding atmospheric stability class. A comparison of the calculated theoretical and measured activity ratios is presented in Table 2.

Table 2. Ratios of ^{14}C specific activity at various distances in the same direction used to identify the average representative atmospheric stability class based on the tree line measurements and Gaussian model calculations.

Sampling site name	Teoretical air specific activity ration for Pasquil stability classes						The median of the measured specific activity ratios of the tree rings
	A	B	C	D	E	F	
N1/N2	9.55	8.37	4.43	0.5	0.014	$4.5 \cdot 10^{-9}$	3.79
W1/W2	2.26	2.08	1.74	0.78	0.23	0.0013	0.92

The results obtained from N1/N2 and W1/W2 radiocarbon specific activity measurements led to the calculation of median values of 3.79 and 0.92, respectively, which indicate the average dilution factor corresponding to C and D stability classes. Thus, the activity ratios of tree rings reveal that in generalized modeling it is possible to choose atmospheric stability class C as a representative annual average at the NPP, and the values of the Gaussian model parameters σ_x and σ_y characteristic of this class can be used accordingly.

6.14. Air pollution by ^{14}C assessment from Ignalina nuclear power plant

The data of ^{14}C specific activity accumulated in the biosphere can be used to reconstruct the emissions from the nuclear facility into the atmosphere and thus create a retrospective method for assessing the impact of the Ignalina NPP on the environment. Furthermore, these measurements make it possible to select the most suitable parameters of the model (parameterize the model).

The correlation between the measured excess of ^{14}C specific activity in tree rings and the integrated annual radiocarbon concentration in the air predicted by the Gaussian model in these sampling areas around the NPP was investigated. The obtained correlation coefficients for each year from 2004 to 2015 are presented in Table 3 and, for the purpose of illustration, graphically depicted in the periods of NPP operation (2004, 2007) and after decommissioning (2009, 2012) in Figure 8.

Table 3. Correlation coefficients between the measured ^{14}C specific activity in tree rings and the integral annual radiocarbon concentration in the air predicted by the Gaussian model.

Years	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
Correlation coefficients r	0.87	0.98	0.7	0.84	0.75	0.83	0.59	0.88	0.94	0.56	0.84	0.88

The obtained correlation coefficients reveal that the distribution of ^{14}C specific activity in the environment calculated by the theoretical Gaussian model agrees well with the actual measurement results. Correlation coefficients (R) range from 0.56 (2013) to 0.98 (2005). This confirms that the emission of radiocarbon from the Ignalina NPP into the atmosphere was relatively constant and it can be predicted and modeled quite effectively using Gaussian emission modeling and annual wind roses of the area. Also, this study confirms that the ^{14}C specific activity measurements of *Pinus Sylvestris* tree rings can be used as a retrospective monitoring tool of radiocarbon emissions from nuclear facilities.

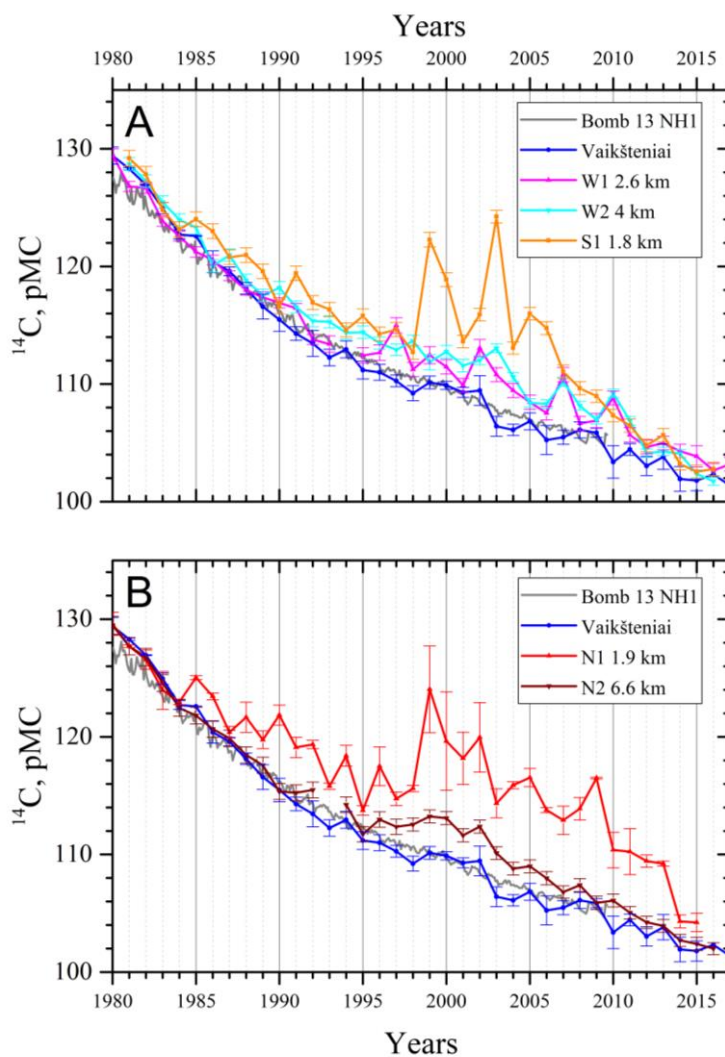


Figure 8. The difference in ^{14}C specific activity in tree rings at different distances from the Ignalina NPP and from the background area in Vaikšteniai.

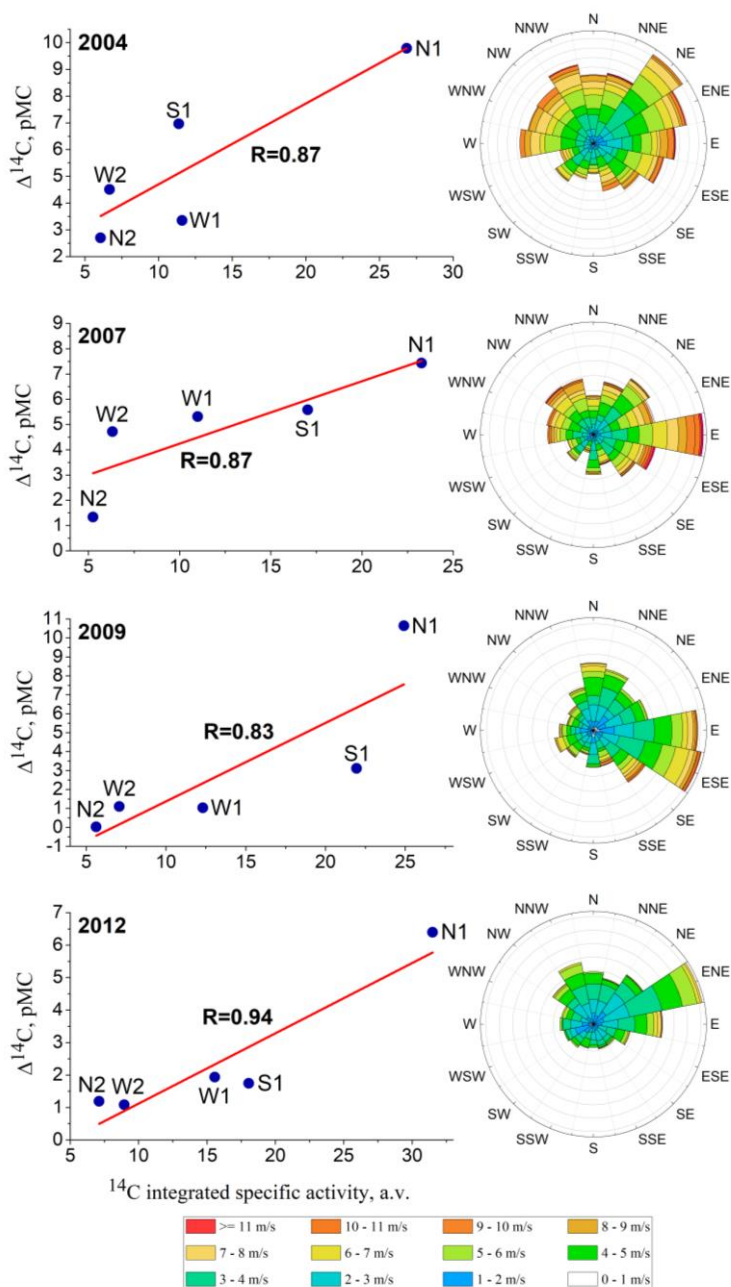


Figure 9. The measured excess of ^{14}C specific activity in the tree rings and the integral annual radiocarbon concentrations in the air in the sampling areas around the NPP are predicted by the Gaussian model.

Using the detailed collected data of meteorological measurements, results of ^{14}C measurement in tree rings (trees from nine locations: E1, E2,

N1, N2, S1, S2, SE, W1 and W2) and completing inverse radiocarbon scattering problem, annual ^{14}C emissions from NPP to the atmosphere were estimated. The average annual ^{14}C emissions are presented in Figure 10. Real meteorological conditions from 2004 to 2014 were taken into account during the calculations, and the average efficiency of radiocarbon dilution in the atmosphere of this period was applied to other periods. Estimated annual emissions of ^{14}C into the atmosphere are within the limits of $4.3 \cdot 10^{11}$ - $1.1 \cdot 10^{13}$ Bq. The statistical relative error of the reconstructed emissions is on average about 24%.

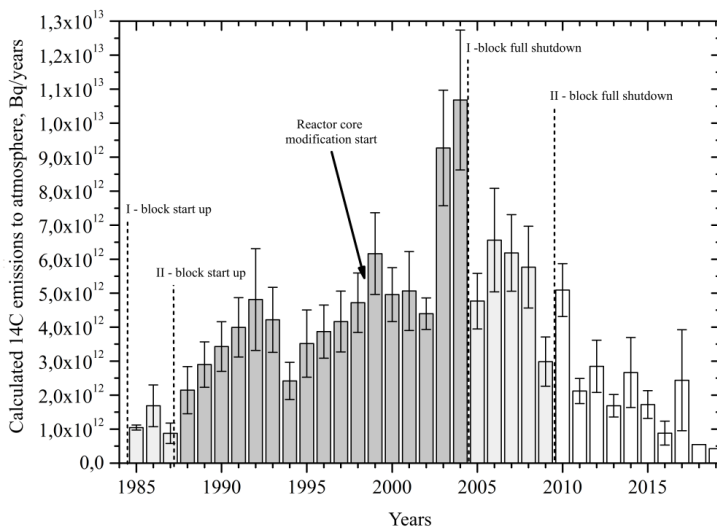


Figure 10. Annual emissions of ^{14}C activity in the air from Ignalina NPP, estimated based on the measurements of ^{14}C activity concentration in the rings of pine wood samples.

It can be seen that the annual emissions of ^{14}C into the atmosphere from the Ignalina NPP are different every year. During the operation of only the 1st nuclear power plant reactor unit in the period of 1985 - 1987, the average emissions reached 1.2 TBq/year. When Unit II became operational in 1988, ^{14}C emissions nearly doubled to 2.1 TBq/year. After that, the emissions level increased. From 1994 to 1998, the correlation coefficient between the annual amount of ^{14}C emitted and the electricity produced is equal to $r = 0.67$. However, in 1999, large-scale reactor repair works (replacement of reactor channels, etc.) were started (Ežerinskis et al. 2018a), which led to increased emissions of radiocarbon into the atmosphere. At the end of 2004, after the Ignalina NPP Unit I was shut down, a decrease in ^{14}C

emissions was observed. And since the end of 2009, after the final shutdown of both Ignalina NPP reactors, an unequivocal decrease in the annual emissions of radioactive carbon from Ignalina NPP has been observed.

A 2D map of the distribution of ^{14}C inside and outside the Ignalina NPP territory was compiled using annual radiocarbon emissions data and Gaussian model with available meteorological data. The model used is analogous to the Gaussian diffusion model, but is modified to estimate the distribution of ^{14}C over the entire area with high spatial resolution. The selected simulation period from 1985 to 2019 covers the entire period of Ignalina NPP operation and forms a map of the potential accumulated specific activity of ^{14}C (Figure 11).

The map shows the integrated activity of ^{14}C in the air, in a color range from red to green, reflecting the most likely long-term dispersion of radiocarbon emissions from the nuclear power plant. The red zone marks the area of the highest modeled activity, where the integrated activity of ^{14}C during the period 1985 - 2019 possibly reached $1.88 \cdot 10^7 \text{ Bq/m}^3$. The orange and yellow colors represent areas of moderate activity, the green zone represents the area of lowest activity, where the integrated activity of ^{14}C decreases to $4 \cdot 10^5 \text{ Bq/m}^3$. The figure presents a modeled circular impact zone with a diameter of 12 km, which unambiguously reflects the possible spread of $^{14}\text{CO}_2$ in the Ignalina NPP environment.

The results of the ^{14}C specific activity measurements at the nuclear power plant carried out by other scientists and their results confirm the developed model. ^{14}C specific activity measurement results of tree rings collected in the red zone by Prof. Mazeika and co-authors (Mazeika et al. 2008) reach from 1 to 11 ΔpMC above the natural background (1984 - 2002). Prof. Mažeika's estimated potential ^{14}C emissions of 10^{12} - 10^{13} Bq per year agree well with the results of the developed model. The largest difference of 11 ΔpMC is observed in a 1999 tree ring from a tree growing in the middle of the northeastern peninsula. In the 2003 article by Jakimaviciute-Maseliene et al., the results of measuring the ^{14}C specific activity of seasonal plants reach as much as 68 ΔpMC difference from the background level (Jakimaviciute-Maseliene et al. 2003). The results of this model are also confirmed by Magnusson et al. ^{14}C specific activity measurements carried out from mosses and annual plants collected near cooling water channels and an industrial sewage runoff channel, where the highest ^{14}C concentrations were determined (Magnusson et al. 2007).

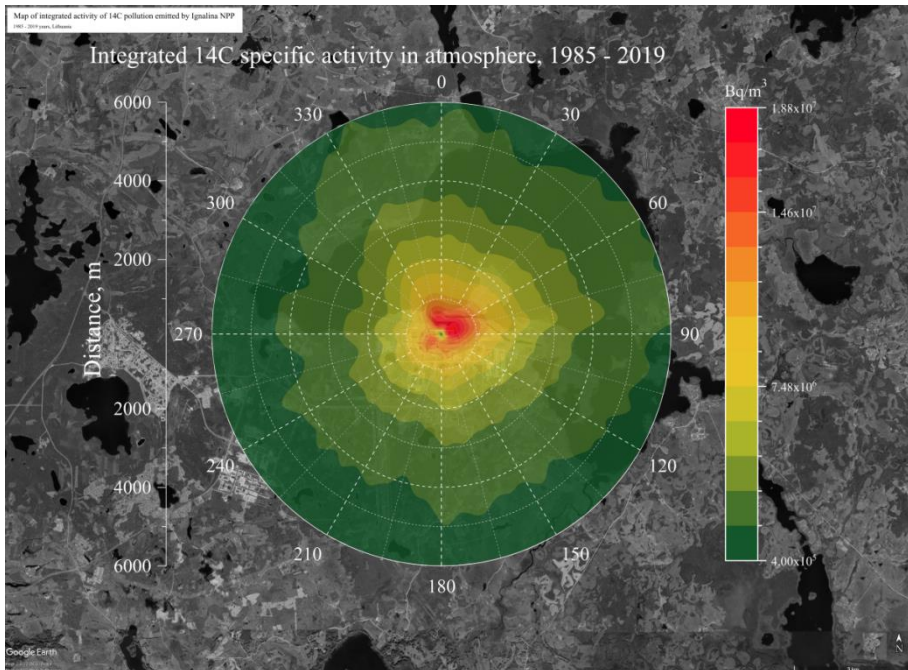


Figure 11. ^{14}C map of the impact of the Igalina nuclear power plant in the period from 1985 to 2019. The colour gradient presents the integrated activity of ^{14}C in air from $4 \cdot 10^5$ to $1.88 \cdot 10^8 \text{ Bq/m}^3$.

This model is versatile and can be applied to the analysis of other nuclear objects or scenarios with the right input data. This is particularly important because the model can provide an opportunity to study nuclear facilities and characterize them retrospectively as a source of pollution. From the given map, Fig. 11. an accurate forecast of various airborne radionuclides can be made and used to study their possible spread in the environment. This significantly simplifies the long-term monitoring of nuclear facilities of any purpose, using nature as a bioindicator – a tool for passive monitoring and pollution registration.

6.15. ^{14}C specific activity in lake sediments

Significant increase of ^{14}C pollution caused by the operation of the Igalina NPP in the sediments of the bottom of Lake Drūkščiai can already be seen in the first layers of organic sediments (Barisevičiūtė et al. 2021) (Fig. 12). From 1985 to 2000, during the operation of the NPP, the nuclear power plant discharged an average of 2.4 to $3.7 \cdot 10^8 \text{ Bq/year}$ into Lake Drūkščiai, mostly in the form of dissolved inorganic carbon (INA) found in various compounds. In 2000 - 2001, a period of significantly increased

radiocarbon ^{14}C pollution was observed, which reached $1.8 \cdot 10^9$ Bq/year. By modeling various hypothetical pollution scenarios, Barisevičiūtė et al found that potentially diffuse pollution had an effect on the balance of redistribution between AS and AIS fractions in lake bottom sediments. The disturbed natural balance of AS and AIS was restored only after 2006 (Figure 12). Therefore, it is likely that the ^{14}C isotope which entered the lake dissolved in water with organic chemical pollutants. This study contributed to and supplemented the studies of Drūkšiai Lake published by Mažeika and others in 2010 and substantiated the presented estimate of discharges from the NPP into the water of Drūkšiai Lake, which amounted to 10^8 Bq/year.

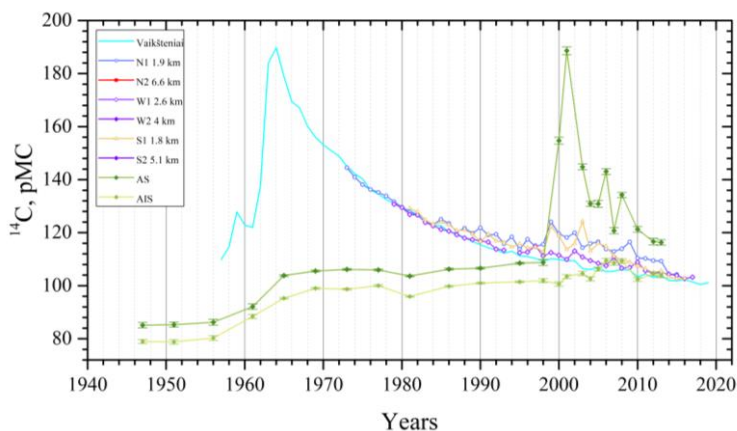


Figure 12. Measurements of ^{14}C specific activity in the bottom sediment fractions of Lake Drūkšiai, together with the results of measurements of tree rings.

Based on the measurements of ^{14}C specific activity in the bottom sediment layers of Lake Drūkšiai, it was possible to create a dynamic model of the radiocarbon cycle in the lake ecosystem, which retrospectively assesses the sources of the lake's radiocarbon pollution. The accumulation of ^{14}C in the lake bottom sediments was modeled separately for each layer. Evaluating the deposition of imported (allochthonous) and local origin (autochthonous) radiocarbon from the lake water column onto the surface of the bottom sediments, ^{14}C fractionation, long-term decay (decomposition) of deposited organic matter and radiocarbon removal from the ecosystem and redistribution of radioactive carbon between AS and AIS fractions in the sediment layer. A diagram of the model is presented in Figure 13.

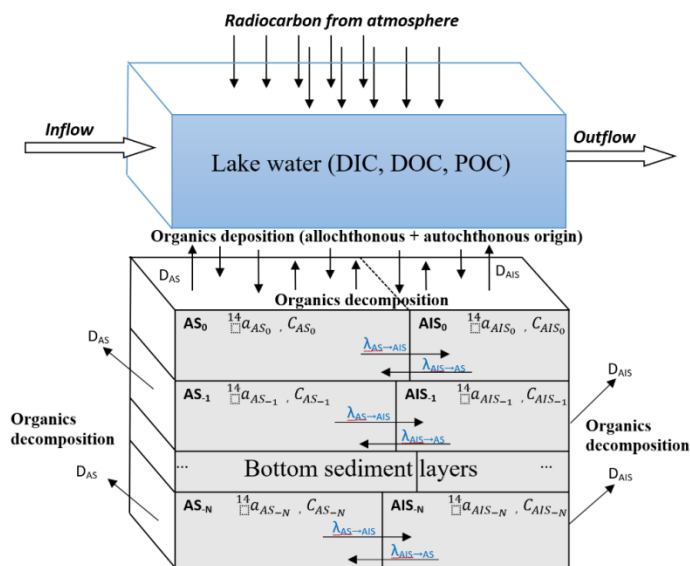


Figure 30. Carbon cycle model scheme in the lake ecosystem: "lake water - bottom sediments". Adapted from (Barisevičiūtė et al. 2021).

This research method involving the ^{14}C specific activity measurements from lake bottom sediments can be used as another active biosensor for monitoring nuclear objects. Due to the extremely high sensitivity of radiocarbon specific activity measurements, which allow accurate characterization of source parameters, this application of the ^{14}C biosensor for pollution assessment remains one of the most informative tools for ^{14}C pollution studies in our environment. Together with atmospheric ^{14}C specific activity measurements, these bottom sediment research methods and developing models provide the necessary information for accurate pollution source characterization and are the most important passive exposure estimators of accumulating radionuclide exposure. This provides extensive research opportunities for recreating environmental exposure scenarios both in water and on land.

6.16. Possible effective radiation dose assessment for local residents

The safety report of the IAEA (2001) proposed a model for estimating the dose generated by the ^{14}C radionuclide received by individuals (International Atomic Energy Agency 2001). The greatest effect of ^{14}C radionuclide is due to internal irradiation, passing through the food chain with food products of plant origin. Exposure to ^{14}C radionuclide by other

Table 4. Results of assessment of the possible effective dose for the local population of the Ignalina NPP.

Years	^{14}C specific activity increase	Excess ^{14}C specific activity in biomass	Individual effective dose through the food chain
	ΔpMC	$\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{C}$	$\mu\text{Sv} \cdot \text{year}^{-1}$
2019	0.93	2.10	0.12
2018	2.29	5.18	0.29
2017	2.04	4.62	0.26
2016	2.18	4.94	0.28
2015	2.38	5.39	0.30
2014	2.82	6.38	0.36
2013	4.78	10.80	0.60
2012	5.81	13.14	0.74
2011	5.79	13.09	0.73
2010	7.95	17.97	1.01
2009	10.64	24.04	1.35
2008	7.79	17.61	0.99
2007	7.43	16.80	0.94
2006	9.51	21.49	1.20
2005	9.71	21.95	1.23
2004	11.91	26.92	1.51
2003	17.83	40.29	2.26
2002	10.50	23.74	1.33
2001	8.88	20.08	1.12
2000	9.75	22.03	1.23
1999	13.90	31.42	1.76
1998	6.39	14.44	0.81
1997	4.72	10.66	0.60
1996	6.49	14.68	0.82
1995	4.60	10.40	0.58
1994	5.72	12.93	0.72
1993	9.16	20.71	1.16
1992	8.57	19.37	1.08
1991	6.21	14.04	0.79
1990	6.37	14.39	0.81
1989	4.84	10.94	0.61
1988	3.53	7.98	0.45
1987	2.21	5.00	0.28
1986	3.20	7.23	0.40
1985	2.46	5.55	0.31
1984	2.24	5.06	0.28

routes has less than 1% effect on the received dose. It is claimed that $^{14}\text{CO}_2$ in biomass is in balance with the atmosphere and the effective dose received by an individual is proportional to the specific activity of ^{14}C in food. The effective dose is calculated according to the formula:

$$D = A \cdot f \cdot g \quad (44)$$

where, D – effective dose ($\mu\text{Sv}/\text{year}$), A – specific activity of ^{14}C in food materials ($\text{Bq}/\text{kg C}$), f – multiplier of locally grown and consumed vegetable food (in this case it is stated that $f = 1$), g – dose effect coefficient ($5.6 \cdot 10^{-5} \mu\text{Sv kg}/\text{Bq}$).

Based on the measurement results and ^{14}C dispersion modeling studies, as well as Ignalina NPP emissions data, it is possible to reliably estimate the ^{14}C pollution from this object and the additional effective dose of ionizing radiation. The obtained results are presented in Table 4.

It is estimated that the effective dose addition created by the ^{14}C emissions of Ignalina NPP was $0.62 \mu\text{Sv}$ per year from 1984 to 1993, $1.15 \mu\text{Sv}$ per year from 1994 to 2009, and $0.47 \mu\text{Sv}$ per year from 2009 to 2019. The highest annual effective dose was recorded in 2003 and reached $2.26 \mu\text{Sv}$ per year. During the entire operation of the nuclear power plant from 1984 to 2015, the average effective dose was equal to $0.81 \mu\text{Sv}$ per year.

6.17. Conclusions

1. Measurements of the annual ^{14}C specific activity of the annual tree ring from 1955 to 2015 were analyzed, the period 1983 - 2015 was examined in detail and ^{14}C pollution generated in the Ignalina NPP environment during the entire operation and after the shutdown of the NPP was estimated based on the results of measurements of ^{14}C specific activity in tree rings of the background area, which coincides by 99.7 % with the data of literary sources.
2. It was established that during the operational period, when small Ignalina NPP maintenance works were performed (1983-1997), the increase of ^{14}C in the Ignalina NPP environment was minimal and reached up to 3 pMC. This ^{14}C background level correlation matches with annual electricity generation capacity ($r = 0.8$). This correlation explained that due to the small amount of maintenance work and the safe operation of the power plant, there were no additional ^{14}C emissions into the environment. However, during the second period, when complex reactor safety improvement projects and routine

maintenance work was carried out before the NPP shutdown (1994 - 2009), the specific activity of ^{14}C in the NPP environment increased, which does not coincide with the annual energy production. The third period reflects the effects of reactor shutdown, which show a reduction in ^{14}C emissions but are well above the background levels.

It is linked that from 1998 to 2003, the change in the specific activity of ^{14}C in tree rings is related to the changed fuel channels in both reactor units (a total of 245 fuel channels were changed). This revealed that during the modernization of nuclear reactors, the contents of the gas circuit containing a high concentration of ^{14}C escaped to the environment when the graphite cooling circuit was opened.

3. It is estimated that from 1984 to 2009, Ignalina NPP created an additional effective dose to the population through the food chain, which averaged $0.81 \mu\text{Sv}$ per year. This additional exposure is low compared to the natural background level (2.5 mSv per year).
4. The analysis of the dependence on the distance to the Ignalina NPP shows a significant decrease in the specific activity of ^{14}C and a high correlation with meteorological parameters at a greater distance from the Ignalina NPP energy units. Applying wind speed and direction data at different altitudes provides the necessary information for modeling the ^{14}C propagation area. The comprehensive ^{14}C dispersion model helps to reconstruct how ^{14}C was released into the environment from Ignalina NPP over a period of time, helping to restore the history of Ignalina NPP operation and events. The analysis of wind rose and ^{14}C specific activity measurements around Ignalina NPP reveals a high correlation of the data, showing the sensitivity of the biosphere to ^{14}C emissions and the suitability of applying the Gaussian plume model.
5. The connection of meteorological parameters and ^{14}C specific activity measurements in tree rings and literary sources reveals similarities of inert gas or ^{137}Cs propagation processes, which confirms that ^{14}C measurements in tree rings can be used as an indirect tool to assess gaseous emissions from NPPs before and after decommissioning. This can be used for modeling radionuclide emissions from NPPs and estimating the impact of ionizing radiation on the population, flora and fauna.
6. The developed model of carbon exchange in Lake Drūkšiai allows us to estimate that from 1985 to 2000 during the operation of Ignalina NPP the nuclear power plant emitted an average of 2.4 to $3.7 \cdot 10^8 \text{ Bq}$ year into Lake Drūkšiai. It was mainly dissolved inorganic carbon

(INA) in various compounds. In 2000-2001, a period of significantly increased radiocarbon pollution was observed, which reached as much as $1.8 \cdot 10^9$ Bq/year.

PADĖKA

Jau nuo vaikystės žavėjausi mokslininkais ir jų demonstruojamu įdomiuoju mokslu. Meilę mokslui ir jo populiarinimui suformavo mano fizikos mokyta Edita Dijokienė, todėl esu be galo jai dėkingas už pirmuosius postūmius, kantrybę ir neišsenkančią motyvaciją rinktis šį iššūkių kupiną fiziko kelią. Ačiū Jums, Edita!

Fizikos mokslų daktaro karjeros galimybes, potencialą ir svarbą Lietuvos mokslo akademijai man atskleidė Prof. Vidmantas Remeikis. Šio, mokslininko gyvenime būtino žingsnio pasirinkimas buvo sunkus, tačiau vertas kiekvienos tam skirtos valandos. Tai neeilinė patirtis ir žinios, kurias nešiuosi visą gyvenimą. Ačiū Jums, Profesoriau, už pagalbą ir suteiktas visas galimybes tapti mokslininku!

Dėkoju dr. Evaldui Maceikai, dr. Žilvinui Ežerinskiui ir visam nuostabiam skyriaus kolektyvui už pagalbą atliekant mokslinius tyrimus ir konsultavimą visais sudėtingiausiais klausimais.

Esu dėkingas žmonai Valerijai už kantrybę, palaikymą ir pagalbą užbaigiant šį milžinišką žingsnį mano gyvenime. Ačiū sūnui Augustui už nuoširdžią ir nesibaigiančią šypseną.

PUBLIKACIJŲ IR KONFERENCIJŲ SĄRAŠAS

8.1. Mokslinės publikacijos

1. Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, **Algirdas Pabedinskas**, Laurynas Juodis, Andrius Garbaras, Evaldas Maceika, Rūta Druteikienė, Darius Lukauskas, Vidmantas Remeikis. Annual Variations of ^{14}C Concentration in the Tree Rings in the Vicinity of Ignalina Nuclear Power Plant. Radiocarbon, vol. 60, no. 4, pp. 1227 – 1236, Aug. 2018. <https://doi.org/10.1017/RDC.2018.44>
2. **Algirdas Pabedinskas**, Evaldas Maceika, Justina Šapolaitė, Žilvinas Ežerinskis, Laurynas Juodis, Laurynas Butkus, Laurynas Bučinskas, Vidmantas Remeikis. Assessment of the Contamination By ^{14}C Airborne Releases in the Vicinity of the Ignalina Nuclear Power Plant. Radiocarbon, vol. 61, no. 5, pp. 1185 – 1197, Oct. 2019. <https://doi.org/10.1017/rdc.2019.77>
3. Rūta Barisevičiūtė, Evaldas Maceika, Laurynas Juodis, **Algirdas Pabedinskas**, Justina Šapolaitė, Žilvinas Ežerinskis, Laurynas Butkus, Vidmantas Remeikis. Modeling of ^{14}C vertical distribution in bottom sediments of the Ignalina nuclear power plant cooling reservoir. Water, vol. 13, no. 10, pp. 1397; May 2021. <https://doi.org/10.3390/w13101397>
4. Laurynas Juodis, Evaldas Maceika, Rūta Barisevičiūtė, **Algirdas Pabedinskas**, Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, Artūras Plukis, Vidmantas Remeikis. Radiocarbon generation and atmospheric release assessment from nuclear power plant with RBMK type reactors. Nuclear Engineering and Design, vol 394, Aug 2022. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2022.111822>

8.2. Mokslinės konferencijos ir mokymai

1. LNFK-42. A. Pabedinskas, Ž. Ežerinskis, J. Šapolaitė, L. Butkus, V. Juzikienė, R. Druteikienė, V. Remeikis. „Radioanglies sklaidos biosferoje tyrimas branduolinės elektrinės aplinkoje“. 2017 spalio 4-6 d. NFTMC, Vilnius
2. Radiocarbon 2018. A. Pabedinskas, Ž. Ežerinskis, J. Šapolaitė, E. Maceika, L. Juodis, L. Butkus, V. Juzikienė, V. Remeikis, „Assessment of the anthropogenic contamination by ^{14}C in the vicinity of the Ignalina nuclear power plant“, 2018 birželio 17-22 d. NTNU, Trondheim, Norway.

3. FizTech 2018. Algirdas Pabedinskas, Žilvinas Ežerinskis, Evaldas Maceika, Justina Šapolaitė, Laurynas Butkus, Vida Juzikienė, Rūta Druteikienė, Vidmantas Remeikis Antropogeninės ^{14}C taršos vertinimas Ignalinos atominės elektrinės aplinkoje.
4. CARbon-14 Source Term CAST: Training course 2 (2018).
5. European Society for Isotope Research: Isotope Workshop XV (2019): Algirdas Pabedinskas, Evaldas Maceika, Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, Vida Juzikienė Laurynas, Butkus, Laurynas Bučinskas, Vidmantas Remeikis, Prevailing wind direction impact on radiocarbon accumulation in biosphere near NPP. Birželio 22-28 d., Liublinas, Lenkija.
6. FizTech 2019. Pabedinskas A., Maceika E., Ezerinskis Z., Sapolaite J., Druteikiene R., Juodis L., Juzikiene V., Butkus L., Remeikis V. Using the ^{14}C activity measurements in tree rings near Ignalina Nuclear Power Plant to examine dilution peculiarities of the gaseous releases from the NPP.
7. SIFER 2019 International doctoral courses „Stable isotopes in forest ecosystem research“. Rugsėjo 9-13 d., Nansi, Prancūzija.
8. International conference on radiation applications (RAP-2019): Algirdas Pabedinskas, Evaldas Maceika, Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, Rūta Druteikienė, Laurynas Juodis, Laurynas Butkus, Laurynas Bučinskas, Vidmantas Remeikis. Using the ^{14}C activity measurements in tree rings near Ignalina Nuclear Power Plant to examine dilution peculiarities of the gaseous releases from the NPP. Rugsėjo 16-19 d. Belgradas, Serbija.
9. 45th Annual Meeting of the European Radiation Research Society (ERRS 2020). Algirdas Pabedinskas, Evaldas Maceika, Rūta Barisevičiūtė, Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, Laurynas Butkus, Laurynas Juodis, Rūta Druteikienė, Vidmantas Remeikis. Investigation of the Self-cleaning Processes in Lake Drūkšiai from Anthropogenic Origin ^{14}C in the Cooling Pond of the Ignalina Nuclear Power Plant. Nuotolinė konferencija. 2020 metų rugsėjo 13-17 d. Lundas, Švedija.
10. FizTech 2020. Algirdas Pabedinskas, Evaldas Maceika, Rūta Barisevičiūtė, Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, Laurynas Butkus, Laurynas Bučinskas, Laurynas Juodis, Vidmantas Remeikis. Savaiminis Drūkšių ežero valymosi nuo antropogeninės ^{14}C taršos tyrimas.
11. 63-rd International Conference for Students of Physics and Natural Science. Algirdas Pabedinskas, Dominykas Žiemys, Evaldas

- Maceika, Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, Laurynas Butkus, Laurynas Bučinskas, Vidmantas Remeikis. Long-Term ^{14}C activity measurements in tree rings near Ignalina nuclear power plant: how it helps to increase safety of our environment. 2020 metų kovo 17-20 d. Vilnius, Lietuva.
12. 3-rd International Radiocarbon in the Environment Conference. A. Pabedinskas, E. Maceika, Z. Ezerinskis, J. Sapolaite, L. Butkus, L. Bucinskas, V. Remeikis. Biosensors in ^{14}C contaminated environment: tree rings research and lake sediments analysis. Žodinis pranešimas. 2021 metų liepos 5-9 d. Glivica, Lenkija.
 13. International conference on radiation applications (RAP-2021). Evaldas Maceika, Rūta Druteikienė, Laurynas Juodis, Algirdas Pabedinskas, Laima Kazakevičiūtė-Jakučiūnienė, Rūta Barisevičiūtė, Žilvinas Ežerinskis, Justina Šapolaitė, Laurynas Butkus, Bena Lukšienė, Nikolaj Tarasiuk. Investigation of the ^{14}C , ^{137}Cs and $^{238,239,240}\text{Pu}$ radionuclide activity concentration distribution in the profiles of lake bottom sediments near Ignalina Nuclear Power Plant. Nuotolinė konferencija. 2021 rugsėjo 6-8d.
 14. EGU 2021. Laurynas Butkus, Rūta Barisevičiūtė, Justina Šapolaitė, Žilvinas Ežerinskis, Evaldas Maceika, Algirdas Pabedinskas, Andrius Garbaras, Vidmantas Remeikis. Investigation of reservoir age variations in Lake Druksiai caused by anthropogenic factors. Nuotolinė konferencija. 2021 balandžio 19-30 d. Viena, Austrija.
 15. Open Readings 2021. Laurynas Butkus, Rūta Barisevičiūtė, Justina Šapolaitė, Žilvinas Ežerinskis, Evaldas Maceika, Algirdas Pabedinskas, Andrius Garbaras, Vidmantas Remeikis. Assessment of the Ignalina Nuclear Power Plant influence on radiocarbon concentration in lake Druksiai. Nuotolinė konferencija. 2021 kovo 16-19 d. Vilnius, Lietuva.

GYVENIMO APRAŠYMAS

Algirdas Pabedinskas gimė 1993 metų kovo mėn. 12 d. Vilniuje. 2011 metais baigė Vilniaus Jono Basanavičiaus gimnaziją ir tęsė mokslus Vilniaus universitete. 2015 metais baigė Branduolinės fizikos bakalauro studijas. 2017 metais baigė Aplinkos ir cheminės fizikos studijas VU ir įgijo fizikos magistro laipsnį. 2017 metais pradėjo doktorantūros studijas Fizinių ir technologijos mokslų centre (FTMC).

ABOUT THE AUTHOR

Algirdas Pabedinskas was born in Vilnius on March 12, 1993. In 2011, he graduated from Vilnius Jonas Basanavičius High School and continued his studies at Vilnius University. In 2015, he completed his bachelor's studies in nuclear physics. In 2017, he graduated from Environmental and Chemical Physics studies at VU and obtained a master's degree in physics. In 2017, he started his doctoral studies at the Center for Physical Science and Technology (FTMC).

UŽRAŠAMS

UŽRAŠAMS

UŽRAŠAMS

Vilniaus universiteto leidykla
Saulėtekio al. 9, III rūmai, LT-10222 Vilnius
El. p. info@leidykla.vu.lt, www.leidykla.vu.lt
bookshop.vu.lt, journals.vu.lt
Tiražas 20 egz.