VILNIAUS UNIVERSITETAS

# FIZIKOS INSTITUTAS

Andrej Rožkov

# DIRBTINIAI RADIONUKLIDAI IR JŲ SĄVEIKA SU AEROZOLIO DALELĖMIS IGNALINOS AE IR JOS APLINKOJE

Daktaro disertacija

Fiziniai mokslai, fizika (02 P)

Vilnius, 2009

Disertacija parengta 2004-2008 metais Fizikos instituto Branduolinių ir aplinkos radioaktyvumo tyrimų laboratorijoje.

Mokslinis vadovas: dr. Rimvydas Jasiulionis (Fizikos institutas, fiziniai mokslai, fizika - 02 P)

Konsultantas: prof. dr. Vidmantas Remeikis (Fizikos institutas, fiziniai mokslai, fizika - 02 P)

### TURINYS

Įvada	as	5
Gina	mieji teiginiai	9
Nauj	umas	9
Publi	ikacijos	10
Prane	ešimai konferencijose	11
Dokt	oranto atlikto eksperimentinio darbo indėlis	13
Pade	ka	13
Litera	atūros apžvalga	14
1.	Dirbtiniai radionuklidai pažemio ore	14
1.1	Radionuklidai aplinkoje po branduolinio ginklo bandymų atmosferoje	16
1.2	<sup>137</sup> Cs patekimas į aplinką po avarijos Černobylio AE	19
1.3	Šiuolaikiniai <sup>137</sup> Cs šaltiniai aplinkoje	24
1.4	<sup>137</sup> Cs antrinis pakėlimas į orą nuo dirvožemio paviršiaus	25
1.5	Gaisrai ir medienos deginimas – <sup>137</sup> Cs emisijos į pažemio orą šaltiniai	27
1.6	Dirbtinių radionuklidų išlėkos į atmosferą iš Ignalinos AE	29
1.7	<sup>137</sup> Cs aktyvumo koncentracijų ore eigos analizė	34
2.	Tirpios aerozolio dalelės atmosferoje	37
2.1	Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, tirpumas plaučių skystyje	
Meto	odika	41
3.1	Pažemio oro aerozolio dalelių bandinių ėmimas	43
3.2	Radionuklidų aktyvumo koncentracijos ore pasiskirstymo skaičiavimas.	51
3.3	Iškritų bandinių rinkimas	53
3.4	Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, išplovimo vandeniu metodika	57
3.4.1	Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, bandinių išplovimo v	vandeniu
ekspe	erimentams atlikti paėmimas	65
Rezu	ıltatai	70
4.1	Radionuklidų aktyvumo koncentracijos pažemio ore Ignalinos AE aplin	koje .70
4.2	<sup>137</sup> Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore eiga Ignalinos AE region	ne 1978-
2008	metais	82
4.3	<sup>137</sup> Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimų analizė	85
4.4	Radionuklidų aktyvumo koncentracijos iškritose	89

4.5	Trumpaamžių	radionuklidų	aktyvumo	koncentracijos	Ignalinos	AE
vent	iliacinėje sistemo					92
Skyr	iaus išvados					94
5.	Surinktų filtrais	aerozolio daleli	ų išplovimas			95
5.1	Pažemio ore sur	rinktų filtrais aer	ozolio daleliu	į išplovimas		95
5.2	IAE ventiliacini	ame ore surinkt	ų filtrais aero	zolio dalelių išplo	vimas	98
5.3	Tirpių ir netirpi	ų aerozolio dale	lių pernešima	s pažemio ore		103
Skyr	iaus išvados					107
Darb	oo rezultatai					108
1 pri	edas. <sup>137</sup> Cs akty	vumo koncentra	cijų ore padi	dėjimų Ignalinos .	AE regione 2	2005-
2006	6 metais analizė					109
Liter	atūra					119

#### ĮVADAS

Branduolinės energetikos saugumo, radionuklidų patekimo į aplinką problemos yra aktualios visose branduolinės energetikos ciklo grandyse ir visose atominių elektrinių paleidimo, darbo ir eksploatacijos nutraukimo stadijose [1].

Atominių elektrinių (AE) darbo metu susidariusių radionuklidų dalis per aukštuminius kaminus su ventiliaciniu oru išmetama į aplinką ir išsisklaido pažemio ore.

Gamtoje susidarantys radionuklidai, nuo pat jonizuojančių spindulių registracijos pradžios, tapo visapusiškų tyrimų objektu. Šių tyrimų pagrindu susiformavo naujos mokslo sritys – branduolinė meteorologija [2] ir platesnės apimties branduolinė geofizika [3]. Branduolinės meteorologijos objektas yra radionuklidų šaltinių ir radionuklidų nuotėkių atmosferoje, jų pasiskirstymo erdvėje ir laike dėsningumų nagrinėjimas. Radionuklidai yra naudojami, kaip oro masių judėjimo žymekliai, tyrinėjant atmosferoje vykstančius fizikinius ir cheminius procesus, kai neįmanoma taikyti kitų tyrimo būdų.

Žinoma, kad ore pasigaminę radionuklidai, skylant emanaciniams radionuklidams arba susidarant kosminių spindulių branduolinėse reakcijose, labai greitai prisijungia prie žymiai didesnio kiekio ore esančių aerozolio dalelių, ir tolimesnę radionuklidų elgseną jau lemia aerozolių dalelių elgseną aprašantys dėsningumai. Aerozolio prigimtis, jo susidarymas, augimas, atmosferos išsivalymas iki šiol yra daugelio tyrimų objektas [4-6].

Atmosferinis aerozolis – sudėtingų cheminių, fizikinių ir biologinių procesų aplinkoje darinys [7, 8]. Gamtoje aerozolio dalelės sutinkamos Aitkeno branduolių kondensacinėje (iki 0,1 µm dydžio), akumuliacinėje (0,1 – 1,0 µm) ir dispersinėje (virš 1,0 µm) modose. Stratosferoje atmosferinio aerozolio dalelių yra mažai (1-3 cm<sup>-3</sup>). Troposferoje gamtinio aerozolio dalelių nepalyginamai daugiau (10<sup>3</sup> cm<sup>-3</sup>); ore santykinai pagal kiekį daugiausia Aitkeno branduolių, pagal gyvavimo laiką – akumuliacinių aerozolio dalelių, o pagal masę – dispersinių aerozolio dalelių [9].

Aerozolio dalelės gali susidaryti iš dirvožemio dulkių, suodžių ar juodosios anglies, jūros druskų iš vandens bangų mūšos, pramonės dūmų per kaminus, automobilių išmetamų degimo produktų, sulfatų iš vulkanų išsiveržimų, fitoplanktono ar sieros oksido ir organinės medžiagos antrinės oksidacijos. Medžiaga aerozolio dalelių augimui gali būti ne tiktai priemaišos ore, bet ir dujos bei vandens garai. Sulfatai, jūros druskos ir cheminių elementų (kartais su radioaktyviais branduoliais) jonai lengvai absorbuoja vandens molekules. Pastarosios dėl savo elektrinio krūvio dipoliškumo aerozolio dalelėje sukuria stabilią struktūrą su stipriomis paviršinio įtempimo jėgomis. Apie 0,1 µm skersmens dalelės yra ir debesų kondensacijos centrai. Palankiomis debesų formavimuisi sąlygomis šios dalelės išauga iki 2 mm ir daugiau iki lietaus lašų dydžio. Pastaraisiais metais [10] stebimas tirpių aerozolio dalelių susidarymas atmosferoje dalelių augimo epizoduose, esant prisotintų vandens garų slėgiui. Vandenyje tirpios dalelės, tikriausiai, auga vandens molekulių sąskaita, kai atmosferoje yra prisotinti vandens garai.

Debesų kondensacijos centrų virtimas krušos elementais buvo tiriamas naudojant radionuklidus, kaip žymeklius, įvedant juos į kamuolinius debesis ir registruojant jų spinduliavimą lietaus lašuose ir kritulių vandenyje [11].

Technogeninių radionuklidų ir aerozolio dalelių sąveikos procesus lėmė jų patekimo į atmosferą būdas. Vykdant branduolinio ginklo bandymus atmosferoje, urano ir plutonio dalijimosi produktai susidarydavo nedideliame tūryje, kuriame slėgis ir temperatūra pasiekdavo tokius dydžius, kuriems esant visos arti esančios medžiagos virsdavo dujomis. Įkaitusių dujų kamuolys išnešdavo radionuklidus virš troposferos. Vėstančiame dujų stulpe vykdavo aerozolio dalelių, turinčių dalijimosi produktų, susidarymas ir vėliau jų pasiskirstymas troposferoje ir stratosferoje. Tokiame dujų mišinyje vyko radionuklidų frakcionavimas ir kondensacinių dalelių susidarymas. Žemiau tropopauzės pasilikę ir prisijungę prie didesnių dalelių radionuklidai, iškrisdavo artimajame debesies pėdsake, o prie smulkių dalelių prisijungę radionuklidai pasiskirstydavo troposferoje, apskriedavo Žemės rutulį ir per keleta mėnesių būdavo išplaunami krituliais. Po eilės bandymų serijų stratosferoje susidarė dalijimosi produktų rezervuaras, kuriame radionuklidų buvimo trukmė siekė apie 1-2 metus. Nutraukus branduolinio ginklo bandymus atmosferoje, dalijimosi produktų aktyvumo koncentracijos ore ir žemės paviršiuje mažėjo. Pradėjo ryškėti iki tol mažai tyrinėti radionuklidų antrinio pakėlimo nuo žemės paviršiaus į orą ir nusėdimo dinaminiai procesai. Po tuomet įvykdytų branduolinio ginklo bandymu iki šiol pasaulio radioekologinio monitoringo stotyse registruojami ilgaamžiai radionuklidai [12].

Saviti radionuklidų sukibimo su aerozolio dalelėmis procesai buvo stebimi radionuklidams patekus į atmosferą po Černobylio atominės elektrinės (AE) avarijos.

Kelių tūkstančių laipsnių temperatūros sąlygojo lakių radionuklidų perėjimą į dujinę fazę ir pernašą kartu su į viršų kylančiomis oro masėms į aukštesnius atmosferos sluoksnius, siekiančius kelių kilometrų aukštį. Vėstant dujoms, analogiškai kaip ir po branduolinių sprogimų atmosferoje, vyko "karštų" dalelių susidarymas dėl dalijimosi produktų kondensacijos ir frakcionavimo ant aerozolio dalelių. Avarijos sugriautas reaktorius ilgam laikui tapo technogeninių radionuklidų patekimo į aplinką šaltiniu. Antrinis dulkių pakėlimas nuo žemės paviršiaus, miškų gaisrai ir antropogeninė veikla po avarijos Černobylio AE užterštose teritorijose nuolat papildo ilgaamžių radionuklidų kiekį pažemio ore [13].

Globalus technogeninių radionuklidų patekimo į aplinką šaltinis yra pasaulio atominių elektrinių darbo metu susidariusių radionuklidų nuolatinės išlėkos į atmosferą. Atominės elektrinės į pažemio orą per aukštuminius kaminus po kelių pakopų filtracijos daugiausia išmeta inertinių dujų ir lakius radionuklidus. Skirtingos radionuklidų ir aerozolio dalelių sąveikai sąlygos susidaro energetiniuose reaktoriuose, turinčiuose dviejų arba vieno kontūro aušinimo sistemas. Kaip taisyklė išmetamo per aukštuminius kaminus oro ir aerozolio dalelių mišinio temperatūra yra neaukšta ir kelių kilometrų atstume nuo elektrinės stebimas ventiliacinio oro praskiedimas iki 1 milijono kartų.

Lietuvoje dirbtinius radionuklidus gamina Ignalinos atominė elektrinė. 1983 metais buvo pradėtas eksploatuoti Ignalinos AE 1500 MW RBMK reaktorius, o 1987 metais buvo paleistas antras reaktorius. Energijos gamyba pirmo bloko reaktoriuje buvo nutraukta 2005 metais, o antro bloko reaktorių planuojama sustabdyti 2009 metų pabaigoje.

RBMK reaktorius turi vieno kontūro su atšaka perkaitintam garui aušinimo sistemą. Radionuklidai, susidarę branduolinio kuro tabletėse atominės elektrinės RBMK reaktoriaus aktyviojoje zonoje, patenka į šilumnešį. Būgnuose separatoriuose vandens ir garo ribą įveikia tiktai dujiniai radionuklidai ir dalis lakių ir vandenyje tirpių radionuklidų junginių. Kartu su vandens garu radionuklidai pasiekia turbiną ir dalyvauja garo kondensacijos procese. Ventiliaciniame kamine radionuklidai randami aerozolio dalelių sudėtyje. Visame kelyje nuo radionuklidų susidarymo iki pažemio oro aerozolio dalelių ir radionuklidų sąveikos sąlygos (temperatūra, vandens garų slėgis, cheminė sudėtis) keičiasi gana plačiose ribose. Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, mišinys su kintančiu laike ir erdvėje tirpių ir netirpių aerozolio dalelių santykiu pasiskirsto AE fakele.

Nuo 1978 metų Ignalinos AE poveikio zonoje Fizikos instituto geofizinėje stotyje (FI stotis) esančioje 3,5 km atstumu nuo Ignalinos AE, nepertraukiamai vykdomi radionuklidų aktyvumo koncentracijų matavimai pažemio ore ir iškritose, FI stočiai atsidūrus IAE pavėjinėje pusėje, registruojami dirbtiniai AE pagaminti radionuklidai [14-16].

Klasikiniai radionuklidų aktyvumo matavimai aerozolio dalelių, surinktų ant filtrų bandiniuose, verti papildymo radionuklidų pasiskirstymo tirpioje ir netirpioje aerozolio dalelių, surinktų ant filtrų, frakcijose ir dirbtinių radionuklidų sąveikos su aerozolio dalelėmis Ignalinos AE ventiliacinėje sistemoje tyrimais.

Šiuo metu radiacines saugos moksle kuriami inhaliuotų radionuklidų nešėjų nusėdimo kvėpavimo takuose modeliai, kuriuose skaičiuojami radionuklidų perėjimo iš aerozolio dalelių, įkvėptų su oru į plaučių skystį, koeficientai skirtingi tirpių ir netirpių aerozolio dalelių frakcijoms [17].

Darbo tyrimo objektas yra dirbtiniai radionuklidai ir jų sąveika su aerozolio dalelėmis sistemoje "Ignalinos AE – aplinka".

Pagrindiniai šio disertacinio darbo tikslai buvo:

1. Nustatyti <sup>137</sup>Cs patekimo į Ignalinos AE aplinkos orą šaltinius ir įvertinti ilgamečius <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų Ignalinos AE pažemio ore pokyčius.

2. Įvertinti dirbtinių radionuklidų pasiskirstymą tirpioje ir netirpioje aerozolio dalelių frakcijose sistemoje "Ignalinos AE – aplinka".

Siekiant šio tikslo buvo suformuluoti tokie uždaviniai:

1. Nuolat matuoti radionuklidų aktyvumo koncentracijas pažemio ore ir atlikti eksperimentinių rezultatų statistinę analizę.

 Įvertinti <sup>137</sup>Cs patekimą į Ignalinos AE aplinkos orą iš po avarijos Černobylio AE užterštų teritorijų.

3. Matuoti dirbtinių radionuklidų aktyvumo koncentracijas iškritose ir įvertinti jų srautus iš oro į žemės paviršių 2005-2008 metais.

4. Tirti aerozolio dalelių bandinių, surinktų pažemio ore ir Ignalinos AE ventiliacinės sistemos dujose, išplovimą ir matuoti radionuklidų aktyvumus bandiniuose iki ir po eksperimento.

5. Pasiūlyti skaičiavimo metodą įvertinti radionuklido pasiskirstymo tirpioje ir netripioje aerozolio dalelių frakcijose kitimą AE fakele.

#### Aktualumas

Radionuklidų patekimas į aplinką yra aktuali problema visose branduolinės energetikos ciklo grandyse ir visose atominių elektrinių paleidimo, darbo ir eksploatacijos nutraukimo stadijose.

Atominių elektrinių poveikio aplinkai vertinimui yra svarbu patikimai registruoti atominės elektrinės pagamintų radionuklidų spinduliavimą aplinkoje ir įvertinti, radionuklidų nešėjų –aerozolio dalelių, savybes.

#### Ginamieji teiginiai

1. Metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio ore pastaraisiais metais kinta su mažėjimo pusiau trukme, kuri artima <sup>137</sup>Cs skilimo pusamžiui.

2. Inertinių dujų radionuklidai, patekę į vieno kontūro atominės elektrinės aušinimo vandens garą, skildami virsta šarminių ir žemės šarminių metalų elementais, tampa kondensacijos branduoliais ir dėl vandens molekulių absorbcijos persotintuose vandens garuose auga radioaktyvios aerozolio dalelės.

#### Naujumas

Pirmą kartą eksponentine funkcija aprašyta metinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore kaita Ignalinos AE regione 1978-2008 metais ir įvertinta <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore mažėjimo pusiau trukmė. Pirmą kartą nustatytas tirpių aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, augimas aušinimo vandens gare vieno kontūro atominės elektrinės kondensatoriuje.

#### **Publikacijos**

Tyrimų rezultatai paskelbti keturiose mokslo publikacijose, įtrauktose į Mokslinės informacijos instituto (ISI) leidinių sąrašą, viename straipsnyje Lietuvos fizikos žurnale (žurnalas įtrauktas į ISI leidinių sąrašą nuo 2007 metų), dviejų konferencijų darbuose (proceedings) rubrikose *aplinkos fizika* (environmental physics) ir *branduolinė geofizika* (nuclear geophysics).

1. R. Jasiulionis, A. Rožkov and L. Vyčinas. Radionuclides in the ground-level air and deposition in the Ignalina NPP region during 2002-2005. Lithuanian Journal of **Physics** vol. 46 (1), 101-108 (2006).

2. R. Jasiulionis, A. Rožkov. Radionuclides in deposition in the Ignalina NPP region in 2005. Central European Journal of Physics vol. 4(4), 417-428 (2006).

3. R. Jasiulionis and A. Rožkov. <sup>137</sup>Cs activity concentration in the ground-level air in the Ignalina NPP region. Lithuanian Journal of Physics vol. 47 (2), 195-202 (2007).

4. R. Jasiulionis, A. Rožkov. The solubility of the aerosol, <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co carrier, in the Ignalina Nuclear Power Plant region. **Applied Radiation and Isotopes** vol. 66 (12), 1992-1998 (2008).

5. R. Jasiulionis, L. Vyčinas, A. Rožkov. In situ study of the <sup>41</sup>Ar plume released from the Ignalina NPP. **Central European Journal of Physics** vol. 6 (4), 775-780 (2008).

Konferencijų medžiaga (proceedings):

6. R. Jasiulionis, A. Rožkov. Radionuclides in deposition in the Ignalina NPP region in 2005. Proceedings of the 3<sup>rd</sup> International Conference "Metals in the Environment", 53-60, ISBN 978-9955-555-12-4 (2006).

7. R. Jasiulionis and A. Rožkov. <sup>137</sup>Cs in the ground-level air and deposition in the Ignalina Nuclear Power Plant region. **American Institute of Physics Conference Proceedings** vol 889, 417-418, ISSN 0094-243X (2007).

#### Pranešimai konferencijose

Darbo rezultatai pristatyti šešiose tarptautinėse ir keturiose nacionalinėse konferencijose ir dviejuose seminaruose Fizikos institute:

 R. Jasiulionis, A. Rožkov. Radionuklidai pažemio ore ir iškritose Ignalinos AE aplinkoje. 36-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, 2005 m. birželio 16-18 d., Vilnius. Tezės konferencijos rinkinyje (p. 170, ISBN 9986-9284-5-1).

R. Jasiulionis, A. Rožkov. Radionuclides in deposition in the Ignalina NPP region in 2005. 3<sup>rd</sup> International Conference "Metals in the Environment", 2006 m. balandžio 26-29 d., Vilnius. Tezės konferencijos rinkinyje"Abstracts" (p. 115-117, ISBN 9955-608-33-1).

3. A. Rožkov, R. Jasiulionis. <sup>137</sup>Cs pernaša iš Černobylio regiono. Lietuvos jaunųjų mokslininkų konferencija, 2006 m. balandžio 7 d.

4. A. Rožkov. <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mn pažemio ore ir iškritose Ignalinos atominės elektrinės aplinkoje 2004-2006 metais. **Fizikos instituro doktorantų konferencija**, 2006 m. birželio 23 d.

5. R. Jasiulionis, A. Rožkov. <sup>137</sup>Cs in the ground-level air and deposition in the Ignalina Nuclear Power Plant region. **6<sup>th</sup> International Conference of the Balkan Physical Union**, 2006 m. rugpjūčio 22-26 d., Stambulas, Turkija. Tezės konferencijos rinkinyje "Book of Abstracts" (p. 998).

6. R. Jasiulionis, A. Rožkov. Ionizing radiation dozes in the environment of the Ignalina nuclear power plant. 7<sup>th</sup> International Scientific Conference "Sakharov Readings 2007: Environmental problems of the XXI century", 2007 m. gegužės 17-18 d., Minskas, Baltarusija. Tezės konferencijos rinkinyje (p. 185, ISBN 978-985-6823-33-9);

7. R. Jasiulionis, A. Rožkov, L. Vyčinas, D. Daudžvardis. <sup>41</sup>Ar spinduliavimo matavimas *"in situ"* Ignalinos AE aplinkoje. **37-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija**, 2007 m. birželio 11-13 d., Vilnius. Tezės konferencijos rinkinyje (p. 165, ISBN 978-9955-33-030-1).

8. R. Jasiulionis, A. Rožkov. <sup>137</sup>Cs Ignalinos AE regiono pažemio ore. **37-oji** Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, 2007 m. birželio 11-13 d., Vilnius. Tezės konferencijos rinkinyje (p. 164, ISBN 978-9955-33-030-1). 9. R. Jasiulionis, A. Rožkov. The solubility of the aerosol – <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co carrier – in the Ignalina nuclear power plant region. **European Aerosol Conference 2007**, 2007 m. rugsėjo 9-14 d., Zalcburgas, Austrija. Tezių (Nr. T10A003) elektroninė versija interneto svetainėje http://www.gaef.de/EAC2007/ ir kompaktiniame diske "EAC 2007. Program and Abstracts".

10. A. Rožkov. Ignalinos AE išlėkų ir pažemio oro aerozolio – <sup>60</sup>Co ir <sup>137</sup>Cs nešėjo
– tirpumo vandenyje vertinimas. Fizikos instituro Branduolinių ir aplinkos radioaktyvumo tyrimų laboratorijos seminaras, 2008 m. kovo 6 d.

11. R. Jasiulionis, A. Rožkov. The dynamics of the aerosol solubility of the aerosol – <sup>137</sup>Cs carrier – in the system "Ignalina Nuclear Power plant – Environment". **European Aerosol Conference 2008**, 2008 m. rugpjūčio 24-29 d., Thessaloniki, Graikija. Tezių (Nr. T06A181P) elektroninė versija interneto svetainėje http://www.eac2008.org/ ir kompaktiniame diske "EAC 2008. Program and Abstracts".

 V. Remeikis, R. Jasiulionis, L. Vyčinas, A. Rožkov. Radionuklidai reaktoriaus RBMK-1500 ventiliacinėje sistemoje. **38-oji Lietuvos nacionalinė fizikos** konferencija, 2009 m. birželio 8-10 d., Vilnius. Tezės konferencijos rinkinyje (p. 173, ISBN 978-9955-33-447-7).

 R. Jasiulionis, A. Rožkov. Radionuklidai Ignalinos AE regiono pažemio ore.
 38-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, 2009 m. birželio 8-10 d., Vilnius. Tezės konferencijos rinkinyje (p. 221, ISBN 978-9955-33-447-7).

14. R. Jasiulionis, A. Rožkov. The solubility and leaching of aerosol particles – radionuclide carriers – collected on filters in the ventilation system of the Ignalina Nuclear Power Plant. **European Aerosol Conference 2009**, 2009 m. rugsėjo 6-11 d., Karlsruhe, Vokietija. Tezių (Nr. T123A02) elektroninė versija interneto svetainėje http://www.gaef.de/EAC2009/ ir kompaktiniame diske "EAC 2009. Program and Abstracts".

#### Doktoranto atlikto eksperimentinio darbo indėlis

 Ignalinos AE poveikio zonoje, veikiančioje FI stotyje, paimta 180 pažemio oro aerozolio dalelių ir 12 iškritų bandinių. Išmatuoti radionuklidų aktyvumai bandiniuose branduolinės gama spektrometrijos metodu.

 atlikti pažemio ore ir Ignalinos AE ventiliacinės sistemos dujose surinktų aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, bandinių išplovimo distiliuotu vandeniu eksperimentai. Viso išanalizuota 40 bandinių.

atlikti radionuklidų aktyvumo koncentracijų pažemio ore ir iškritose Ignalinos
 AE regione skaičiavimai, naudojant priemaišų pernešimo lokaliniame mastelyje
 modelius.

pranešėjas devyniose mokslinėse konferencijose.

– moksliniai straipsniai rengti kolektyviai kartu su vadovu.

#### Padėka

Nuoširdžiai dėkoju dr. Rimvydui Jasiulioniui už puikų vadovavimą disertaciniam darbui. Dėkoju Fizikos instituto direktoriui prof. dr. Vidmantui Remeikiui, dr. Nikolaj Tarasiuk, dr. Rūtai Druteikienei, dr. Narcizai Špirkauskaitei ir visiems Branduolinių ir aplinkos radioaktyvumo tyrimų laboratorijos darbuotojams už diskusijas, pastabas ir patarimus svarstant disertacinį darbą laboratorijos ir instituto seminaruose. Taip pat norėčiau padėkoti Michailui ir Tatjanai Litvinovams už pagalbą imant aerozolio dalelių bandinius Ignalinos AE ventiliaciniame kamine bei Ruslanui Jerenkevičui už Ignalinos AE meteorologinius duomenis.

### LITERATŪROS APŽVALGA

#### 1. Dirbtiniai radionuklidai pažemio ore

Dirbtiniai radionuklidai patenka į aplinką visose branduolinės energetikos ciklo grandyse ir visose atominių elektrinių paleidimo, darbo ir eksploatacijos nutraukimo stadijose.

<sup>137</sup>Cs yra vienas iš ilgaamžių urano dalijimosi produktų, turintis dujinį pirmtaką ir trumpaamžį skilimo produktą, spinduliuojantį patogius registracijai gama kvantus. Praėjus daugeliui metų po branduolinio ginklo bandymų atmosferoje ir virš 20 metų po avarijos Černobylio AE globaliai pasiskirstęs <sup>137</sup>Cs nuolat registruojamas pažemio ore pasaulinėse radioekologinio monitoringo stotyse.

Cezis ( $_{55}Cs$ ) – periodinės elementų lentelės IA grupės šarminis metalas, pasižymintis maža išorinio elektrono jonizacijos energiją (3,9 eV) ir dideliu cheminiu aktyvumu.

Gamtoje sutinkamas vienas stabilus cezio izotopas <sup>133</sup>Cs. Dirbtiniu būdu pagaminta virš 20 cezio radioizotopų su masės skaičiais nuo 123 iki 144. Radioekologiniu požiūriu yra svarbūs trys ilgaamžiai cezio izotopai: <sup>134</sup>Cs ( $t_{1/2}$ =2,07 metų), <sup>135</sup>Cs ( $t_{1/2}$ =2,3×10<sup>6</sup> metų) ir <sup>137</sup>Cs ( $t_{1/2}$ =30,08 metų), kurie susidaro dalijantis uranui arba plutoniui.

l pav. pateikiama supaprastina <sup>137</sup>Cs skilimo schema, kurioje parodytas <sup>137</sup>Cs  $\beta^{-}$  skilimas į stabilų nuklidą <sup>137</sup>Ba ir iš jo sužadintų energetinių lygmenų spinduliuojami gama kvantai  $\gamma$ [18].



1 pav. Supaprastinta <sup>137</sup>Cs skilimo schema. Nurodytos <sup>137m</sup>Ba energetinių lygmenų energijos (keV). *Šaltinis: Nudat2, 2008.*  <sup>137</sup>Cs  $\beta^{-}$  skilimo metu susidaro dukterinis <sup>137m</sup>Ba ( $t_{1/2}=2,6$  min.). 94,4 %  $\beta^{-}$  skilimo aktų (didžiausia  $\beta^{-}$  skilimo energija  $\beta_{max} = 514,0$  keV) įvyksta į <sup>137m</sup>Ba sužadintą 661,7 keV energetinį lygmenį. Tikimybė skilimo metu iš karto susidaryti stabiliam <sup>137</sup>Ba branduoliui, esančiam pagrindiniame energetiniame lygmenyje, yra 5,6 % ( $\beta_{max} = 1175,6$  keV). 5,8×10<sup>-4</sup> %  $\beta^{-}$  skilimo aktų ( $\beta_{max} = 892,1$  keV) įvyksta į <sup>137m</sup>Ba sužadintą 283,5 keV energetinį lygmenį.

Sužadinto dukterinio <sup>137m</sup>Ba perėjimas iš sužadintos izomerinės būsenos į stabilaus <sup>137</sup>Ba pagrindinį lygmenį įvyksta dviem konkuruojančiais būdais: gama kvanto ( $\gamma$ ) išspinduliavimas arba konversinio elektrono išlėkimas iš bario atomo *K* (*CE K*) arba *L* (*CE L*) sluoksnio, lydimas charakteringąja Rentgeno spinduliuote (*X*) arba Ožė-elektronais (*Ožė-e*).

1 lentelėje pateiktos iš <sup>137m</sup>Ba branduolio ir atomo elektronų sluoksnių skilimo metu išlekiančios įkrautos dalelės, Rentgeno fotonai ir gama kvantai bei jonizuojančiųjų dalelių emisijos tikimybės vienam skilimui.

Spinduliuotės tipas	Energija, keV	Emisijos tikimybė, %
γ1	283,5	5,8×10 <sup>-4</sup>
γ2	661,7	85,1
CE K	624,2	7,7
CE L	655,7	1,4
$XL_{I}$	4,5	0,9
$XK_{I}$	31,8	2,0
$XK_2$	32,2	3,6
$XK_3$	36,3	0,3
$XK_4$	36,4	0,7
$XK_5$	37,3	0,2
Ožė-e L	3,7	7,3
Ožė-e K	26,4	0,8

1 lentelė. Jonizuojančiųjų dalelių spinduliavimo tikimybės skylant <sup>137m</sup>Ba. *Šaltinis: Nudat2, 2008.* 

<sup>137</sup>Cs yra amžinoje pusiausvyroje su <sup>137m</sup>Ba. Tai leidžia gama spektrometriškai išmatavus bandinio energetinį gama spektrą, pagal intensyvią 661,7 keV spektro liniją apskaičiuoti <sup>137m</sup>Ba aktyvumą ir, atitinkamai, <sup>137</sup>Cs aktyvumą bandinyje. Literatūroje 661,7 keV energetinio gama spektro linija dažnai dėl paprastumo priskiriama <sup>137</sup>Cs.

Dideli <sup>137</sup>Cs kiekiai pateko į aplinka praeitame šimtmetyje, vykdant branduolinio ginklo bandymus ir įvykus avarijoms branduolinės energetikos

objektuose. Šiuo metu aplinkos komponentėse <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos yra artimos jų registravimo branduolinės spektrometrijos metodais aptikimo ribai.

#### 1.1 Radionuklidai aplinkoje po branduolinio ginklo bandymų atmosferoje

Dirbtinės kilmės radionuklidų patekimo į aplinką pradžia susijusi su branduolinio ginklo bandymais atmosferoje. Per sąlyginai trumpą branduolinių bandymų atmosferoje laiką, 1945-1980 metais, aplinką pasiekė didelis dirbtinės kilmės dalijimosi produktų kiekis, kuris paplito po visą Žemę ir lėmė ilgalaikį poveikį žmonijai ir aplinkai globaliu mastu [12].

Branduolinio ginklo galia ir reikšmė buvo suvokta po įvykdyto atominės bombos sprogdinimo Trinity Site poligone (JAV) 1945.07.16 ir kiek vėliau numetus branduolines bombas ant Hiroshima ir Nagasaki miestų 1945.08.05 ir 1945.08.09. Paskutinis branduolinio ginklo bandymas atmosferoje buvo įvykdytas 1980 m. spalio 16 d. Kinijoje.

Požeminiai branduolinių įtaisų sprogdinimai vykdomi iki šiol. Šiuo atveju dalis dalijimosi produktų neišvengiamai patenka į atmosferą [19, 20].

Iki 1980 metų, t.y. per 35 metus, buvo įvykdyti 543 branduolinio ginklo bandymai atmosferoje, kurių suminė galia siekė 440 Mt. Intensyviausiai bandymus vykdė TSRS ir JAV, kurios susprogdino po 219 branduolinių įtaisų. Bandymų skaičiaus maksimumas yra 1961-1962 metais, kai buvo susprogdinta 340 Mt suminės galios branduolinių įtaisų.

Bendras požeminių bandymų skaičius siekia 1900, o jų suminė galia – 90 Mt. Paskutinis užregistruotas bandymas (0,5-1 kt) įvykdytas Korėjos Liaudies Demokratinėje Respublikoje 2006.10.09 [21]. Palyginus su atmosferiniais bandymais, požeminių bandymų poveikio aplinkai pasekmės yra ženkliai mažesnės.

Sprogstant branduoliniam įtaisui, per milijonines sekundės dalis, jo ribotame tūryje temperatūra pasiekia milijonus laipsnių. Visos medžiagos, įskaitant urano (<sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U) arba plutonio (<sup>239</sup>Pu) dalijimosi skeveldras, nesureagavusį uraną arba plutonį bei aktyvuotą įtaiso konstrukcinę dalį, akimirksniu virsta jonizuotomis dujomis. Susidaręs ugnies kamuolys greitai plinta, o dėl staiga sumažėjusio medžiagos tankio sprogimo epicentre jis kyla į viršų. Dalijimosi produktai išmetami į viršutinius troposferos sluoksnius.

Termobranduolinio sprogimo metu (kai įtaiso galia didesnė, nei 1 Mt) didžioji dalis urano ir plutonio dalijimosi energijos sunaudojama termobranduolinės reakcijos aktyvacijai, o termobranduolinės reakcijos energija yra tokia galinga, kad jonizuoti dalijimosi produktai ir termobranduolinės sintezės produktai oro konvekciniais srautais, susidarančiais sprogimo metu, inžektuojami net į 15-20 km aukštį, į stratosferą. To pasekoje po daugelio termobranduolinio ginklo bandymų susiformavo ilgaamžių dirbtinių radionuklidų stratosferinis rezervuaras. Į stratosferą iki 70 % radionuklidų pateko 1961-1962 metais, kai buvo bandomi didelės galios branduoliniai įtaisai. 2 lentelėje pateikiamos kai kurių ilgaamžių dalijimosi produktų, pasiekusių atmosferą branduolinio ginklo bandymų 1945-1980 metais, charakteristikos.

2 lentelė. Branduolinio ginklo bandymų metu (1945-1980) susidarantys dalijimosi produktai ir kai kurios jų charakteristikos. *Šaltinis: UNSCEAR, 2000.* 

Dalijimosi produktas	Pusėjimo trukmė, metai	Vidutinis susidarymas branduolinio ginklo sprogdinimo metu, 10 <sup>15</sup> Bq Mt <sup>-1</sup>	Emisija į atmosferą, 10 <sup>15</sup> Bq
<sup>3</sup> H	12,32	740	186 000
<sup>90</sup> Sr	28,90	730	117 000
<sup>137</sup> Cs	30,08	5,90	948
$^{14}C$	5730	0,85	213
<sup>241</sup> Pu	14,29	-	142

Aukštuose atmosferos sluoksniuose, vėstant ugnies kamuoliui, dalijimosi produktai iš dujinės (garų) fazės vykstant kondensacijai formuoja sferinės formos submikroninio dydžio daleles (0,02-0,2 μm) [22].

Atskiru radionuklidu kondensacija dėl skirtingų jų perėjimo iš dujinės fazės į skystį temperatūrų vyko skirtinguose atmosferos aukščiuose. <sup>137</sup>Cs ir lakių dalijimosi produkty, turinčių dujinius pirmtakus (pvz., <sup>89</sup>Sr, <sup>90</sup>Sr), frakcionavimas vyko kartu. Tai rodo išmatuoti radionuklidų santykiai atmosferinėse iškritose, surinktose įvairiose pasaulio vietose 1958-1985 metais. Radionuklidų aktyvumų santykių reikšmių artumas ir pasikartojamumas iškritu bandiniuose rodo, kad <sup>137</sup>Cs ir <sup>90</sup>Sr patekimo i atmosferą, pasiskirstymo ir pašalinimo iš jos mechanizmai yra panašūs. Žinoma, kad dalelėms būdingas nehomogeniškas dalijimosi produktų pasiskirstymas, kai lakieji susikaupia paviršiniuose produktai aerozolio dalelių sluoksniuose: lakūs higroskopiniai radionuklidai (<sup>137</sup>Cs<sup>+</sup>, <sup>90</sup>Sr<sup>2+</sup>) išsidėsto išoriniame dalelių sluoksnyje ir

aktyviai sąveikauja su vandens molekulėmis [23]. Nustatyta, kad iškritose iš stratosferinio rezervuaro iki 70 % <sup>137</sup>Cs buvo tirpioje aerozolio dalelių frakcijoje [24].

Stratosferoje susikaupę dalijimosi produktai, vykstant oro masių cirkuliacijai, pernešami į žemesnius atmosferos sluoksnius. Submikroninės dalelės, dalijimosi produktų nešėjos, iš stratosferos į žemesnius atmosferos sluoksnius patekdavo dėl sezoninių tropopauzės aukščio svyravimų, per tropopauzės trūkius su sraujymėmis, dėl radionuklidų nešėjų difuzijos per tropopauzę bei išsivystant galingiems aukštuminiams ciklonams [25]. Vidutinis daugiametis tropopauzės virš Lietuvos aukštis žiemą yra 9,8 km (vasario mėn.), vasarą – 11,2 km (liepos mėn.) [26].

Viršutinėje troposferoje iki debesų susidarymo zonos aerozolio dalelių pernašos greičiai mažiausi. Debesų susidarymo aukštyje dalis aerozolio dalelių tampa kondensacijos branduoliais. Dalijimosi produktų platuminis koncentracijų pasiskirstymas atmosferinėse iškritose priklauso nuo kritulių kiekio vietovėje ir intensyvumo, aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, koncentracijos ore ir skirtingų radionuklidų nešėjų cheminių ir fizikinių savybių skirtumų. Atmosferos savivalai nuo radionuklidų sauso klimato zonose svarbūs yra aerozolio dalelių sauso nusėdimo ant žemės paviršiaus procesai.

Įvertintos metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos iškritose skirtingų platumų regionuose (2 pav.).



2 pav. Metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos iškritose (kBq m<sup>-2</sup>) skirtingų platumų regionuose, neįvertinant avarijos Černobylio AE indėlio Europos šalims. *Šaltinis: UNSCEAR, 2000.* 

### 1.2 <sup>137</sup>Cs patekimas į aplinką po avarijos Černobylio AE

1986.04.26 01:23 (Maskvos laiku) Černobylio AE 4 bloke įvyko didžiausia branduolinės energetikos istorijoje avarija [27]. Avarijos metu branduolinis reaktorius buvo sugriautas, į atmosferą pateko didžiuliai radionuklidų kiekiai, kurie pasklido visame Šiaurės pusrutulyje, o <sup>137</sup>Cs iki šiol registruojamas gamtinėje aplinkoje.

Fizikos instituto geofizinėje stotyje automatiniu gama dozimetru Černobylio AE avarijos debesies radionuklidų spinduliavimas buvo užregistruotas 1986.04.29 23 val. Didžiausia <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija ore 0,5 Bq m<sup>-3</sup> užregistruota oro bandinyje surinktame naktį iš balandžio 29 d. į 30 d. [28].

Dalijimosi produktų emisija iš sugriauto reaktoriaus į atmosferą buvo skirtinga skirtingais laikotarpiais nuo avarijos pradžios ir priklausė nuo temperatūros režimo sugriauto reaktoriaus aktyviojoje zonoje.

3 lentelėje parodyti branduolinio kuro dalijimosi produktų aktyvumai Černobylio AE reaktoriaus aktyvioje zonoje iki avarijos ir išlėkose į atmosferą 1986.04.26-05.07.

3 lentelė. Radionuklidų aktyvumai reaktoriaus aktyviojoje zonoje iki avarijos,  $Q_0$ , ir išlėkose į atmosferą 1986.04.26-05.07,  $Q_1$ . Radionuklidų aktyvumai perskaičiuoti 1986.05.06, duomenų paklaida iki 50 %. *Šaltinis: Europos komisija/Gidromet, 1998*.

Dalijimosi	Radionuklie		
produktos	reaktoriaus aktyvioje zonoje	išlėkose į atmosferą	$Q_{I}/Q_{0}$ , %
produktas	iki avarijos, $Q_0$ , $10^{15}$ Bq	1986.04.26-05.07, $Q_I$ , 10 <sup>15</sup> Bq	
<sup>133</sup> Xe	6500	6500	100
$^{131}$ I	3200	1200-1700	38-53
<sup>137</sup> Cs	280	74-85	26-30
<sup>90</sup> Sr	200	8	4
<sup>140</sup> Ba	4800	170	3,5
$^{95}$ Zr	5600	170	3

Temperatūros režimo ypatumai avarijos metu sugriautame branduoliniame reaktoriuje lėmė skirtingas išlekiančių į orą dalelių fizikines-chemines savybes, izotopinę sudėtį ir pasiskirstymą pagal dydį. Radionuklidų emisija iš Černobylio AE branduolinio reaktoriaus avarijos metu skirstoma į keturias fazes, ir kiekvienai fazei būdingi skirtingi aktyviojoje zonoje vykstantys procesai [29-31].

1 fazė (1986.04.26-27). Įvykus branduolinio reaktoriaus šiluminiam sprogimui, prasidėjo grafito degimas ir dalis branduolinio kuro buvo išsklaidyta aplink reaktorių. Dideli inertinių dujų, jodo izotopų ir lakiųjų dalijimosi produktų (pav., cezio) kiekiai pateko į atmosferą ir išlėkų aukštis siekė 1200-1500 m. Radionuklidų emisija į orą 1 fazės laikotarpiu vertinama apie 12 MCi.

2 fazė (1986.04.28-05.02). Gaisras buvo užgesintas, tai sumažino grafito klojinio temperatūrą. Vykstant branduolinio kuro oksidacijai reaktoriuje, susidarė sunkiai besilydančių ir disperguotų dalijimosi produktų "karštosios" dalelės, kurios turbulentiniais ir advekciniais oro srautais buvo išsklaidytos dideliais atstumais nuo avarijos epicentro. Nelakių dalijimosi produktų santykiai "karštose" dalelėse buvo artimi dalijimosi produktų santykiams branduoliniame kure. "Karštosios" dalelės buvo netaisyklingų formų, o jų paviršiniuose sluoksniuose gausu įvairiausių priemaišų (suodžių, išsilydžiusių konstrukcinių sistemų elementų). Išlėkų aukštis sumažėjo iki 200-400 m.

3 fazė (1986.05.03-06). Prasidėjo grafito blokų oksidacija reaktoriaus aktyviosios zonos viduje, ir grafito temperatūra pakilo iki 2000 °C [32]. Reaktoriuje likęs po sprogimo branduolinis kuras ir aktyviosios zonos konstrukciniai elementai išsilydė ir per ertmes nutekėjo po branduolinio reaktoriaus centrine sale. Iš branduolinio kuro išsilaisvino ir iki 1200 m aukščio į atmosferą išlėkė lakieji radionuklidai. Vėstant išlėkų kamuoliui, dalijimosi produktai iš dujinės fazės kondensavosi, sudarydami smulkias daleles. Jų savybės buvo artimos branduolinių sprogdinimų metu atmosferoje susidariusių dalelių savybėms. Smulkios kondensacinės dalelės, radionuklidų nešėjos, buvo nešamos oro masėmis didžiuliais atstumais nuo šaltinio ir pasklido teritorijose, labai nutolusiose nuo avarijos epicentro.

4 fazė (1986.05.07-14). Staigus grafito oksidacijos proceso ir radionuklidų emisijos sumažėjimas.

Priklausomai nuo oro masių pernašos krypties radionuklidų emisijos metu ir vėliau, radionuklidai buvo išsklaidyti įvairiomis kryptimis nuo Černobylio AE (3 pav.) [33, 34]. Iš viso, įvykus Černobylio AE avarijai, į aplinką pateko apie  $80 \times 10^{15}$  Bq <sup>137</sup>Cs. Europoje 200 000 km<sup>2</sup> ploto teritorijose <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos atmosferinėse iškritose viršijo 40 kBq m<sup>-2</sup>.

4 pav. pavaizduotas "bombinio" ir Černobylio kilmės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos dirvožemio paviršiuje Europoje.



3 pav. Černobylio AE avarijos metu užterštų oro masių trajektorijos skirtingais laikotarpiais (data ir valanda Grinvičo laiku): 1) 1986.04.26 00:00, 2) 04.27 00:00,
3) 04.27 12:00, 4) 04.29 00:00, 5) 05.02 00:00, 6) 05.04 12:00. *Šaltinis: IAEA, 2006.*



4 pav. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos dirvožemio paviršiuje Europoje (aktyvumas perskaičiuotas 1986.05.10 datai). *Šaltinis: Europos komisija/Gidromet, 1998*.

Pastaruoju metu pasirodė publikacijos apie dar vieną <sup>137</sup>Cs emisijos į aplinką šaltinį – Černobylio AE sarkofagą, kuris yra 1986 m. lapkričio mėn. įrengtas inžinerinis statinys virš Černobylio AE sugriauto 4 bloko, skirtas lokalizuoti avarijos padarinius. Vertinama, kad "sarkofage" yra apie 150 t branduolinio kuro, kurio didžioji dalis yra betono ir grafito lydinyje po centrine sale [35].

Kasmet į "sarkofagą" per plyšius ir paviršiaus įtrūkimus jo konstrukcijoje patenka apie 2000 m<sup>3</sup> kritulių. Dar 600 m<sup>3</sup> vandens jame susikondensuoja dėl temperatūrų skirtumų "sarkofago" viduje ir išorėje. Veikiami vandens branduolinio kuro lydiniai disperguojasi, nuolat susidaro aerozolio dalelės, kurios dėl natūralių ventiliacijos procesų patenka į patalpas po "sarkofago" stogu [36]. Šiuo metu po "sarkofago" stogu yra keletas tonų dulkių, kurių aktyvumo koncentracija siekia  $10^5$ - $10^7$  Bq m<sup>-2</sup>. Virš pusės po stogu esančių dulkių yra mažesnės nei 10 µm (5 pav.) [37].



Aerodinaminis skersmuo, µm

5 pav. Radionuklidų aktyvumo pasiskirstymas skirtingo aerodinaminio skersmens dulkėse po "sarkofago" stogu.  $d_{50}$  – aerozolio aktyvumo medianinis aerodinaminis skersmuo. *Šaltinis: Pretzch, 2004.* 

Dalis dulkių patenka į aplinką per Černobylio AE 3 bloko 100 m aukščio ventiliacinį kaminą. Kita dalis dulkių dėl temperatūrinių ir slėgio skirtumų "sarkofago" viduje ir išorėje pastoviai lekia pro plyšius stoge į orą. Plyšių stoge plotas

siekia 120 m<sup>2</sup>. Vidutinis oro debitas per ventiliacinį kaminą yra (45-47)×10<sup>3</sup> m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> žiemą ir (7-11)×10<sup>3</sup> m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> vasarą, o pro plyšius – iki 900×10<sup>3</sup> m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup>.

1996-1999 metais vidutinė metinė radionuklidų emisija pro plyšius sudarė  $8,6\times10^9$  Bq, o 2005 metais –  $2,9\times10^8$  Bq. Beveik 80 % aktyvumo išlėkose lėmė <sup>137</sup>Cs spinduliuotė. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore šalia plyšių buvo apie 0,2-5,0 Bq m<sup>-3</sup>, o išlėkose per ventiliacinį kaminą buvo 10-100 kartų mažesnės [40-44].

6 pav. pateikiamas dulkių dalelių, <sup>137</sup>Cs nešėjų, pasiskirstymas pagal dydį ore šalia "sarkofago" stogo plyšio pietinėje dalyje (A) ir 50 m į pietus nuo "sarkofago" (B).



6 pav. Dulkių, <sup>137</sup>Cs nešėjų, pasiskirstymas pagal dydį ore šalia "sarkofago" stogo plyšio pietinėje dalyje (A) ir 50 m į pietus nuo Sarkofago (B). Aerozolio dalelių bandiniai paimti 2003.10.21-28. *Šaltinis: Ogorodnikov, 2006*.

Iki šiol avarijos sugriautas Černobylio AE branduolinis reaktorius išlieka svarbiu radionuklidų emisijos į orą šaltiniu 30 km zonoje aplink elektrinę [45].

Šiuo metu <sup>137</sup>Cs patekimas į aplinką yra nepalyginamai mažesnis negu kad buvo branduolinio ginklo bandymų atmosferoje laikotarpiu ir įvykus Černobylio AE avarijai.

### 1.3 Šiuolaikiniai <sup>137</sup>Cs šaltiniai aplinkoje

Šiuo metu globalūs <sup>137</sup>Cs patekimo į atmosferą šaltiniai yra branduolinės energetikos objektai.

1. Radionuklidai patenka į atmosferą kartu su išlėkomis iš panaudoto branduolinio kuro perdirbimo gamyklų. 1997 metais <sup>137</sup>Cs emisija į orą iš Sellafield (D. Britanija) branduolinio kuro perdirbimo gamyklos buvo apie 6 MBq, ir kiek mažiau iš La Hague (Prancūzija) [12]. Panaudoto branduolinio kuro perdirbimas arba laidojimas išlieka potencialiu aplinkos taršos šaltiniu, kol nebus sukurti saugesni panaudoto branduolinio kuro tvarkymo būdai.

 Radionuklidai į orą patenka avarinių situacijų pasaulio atominėse elektrinėse metu. 4 lentelėje pateikiamas TATENA INES skalėje suklasifikuotų avarijų pasaulio AE sąrašas [46].

Tarptautinė branduolinių įvykių skalė (INES)	Atominė elektrinė, šalis	Metai
7	Černobylio AE, TSRS	1986
5	Three Mile Island AE, JAV	1979
	Jaslovske Bohunice AE, Slovakija	1977
4	Saint-Laurent AE, Prancūzija	1980
	Tokaimura AE, Japonija	1999
3	Paks AE, Vengrija	2003
2	Forsmark AE, Švedija	2007
Ζ	Asco AE, Ispanija	2008 balandis
1	Tricastin AE, Prancūzija	2008 liepa

4 lentelė. Branduolinių įvykių, suklasifikuotų pagal TATENA INES skalę, atominėse elektrinėse sąrašas. *Šaltinis: IAEA*, 2008.

3. Pasaulyje šiuo metu veikia 439 branduolinių reaktorių, kurių suminė elektrinė galia siekia 372 GW. Pusė visų branduolinių reaktorių yra trijose pasaulio

valstybėse: JAV, Japonijoje ir Prancūzijoje. Šiuo metu statomi dar 33 branduoliniai reaktoriai, daugiausiai Rusijos Federacijoje, Indijoje ir Kinijoje [47].

7 pav. pateiktos veikiančių atominių elektrinių, nutolusių 1000 km atstumu nuo Lietuvos geografinio centro (N 55° 19' 47,57", E 23° 54' 19,91"), tinklas.



7 pav. Veikiančios atominės elektrinės, nutolusios 1000 km atstumu (apskritimo skersmuo 1000 km) nuo Lietuvos geografinio centro (N 55° 19' 47,57", E 23° 54' 19,91"). *Nuotrauka: Google Earth, 2007.* 

7 pav. matyti, kad esant palankiai vėjo krypčiai ir greičiui 3-4 m s<sup>-1</sup> beveik 20-ties atominių elektrinių išlėkos su oro masėmis teoriškai per tris paras (vidutiniškai tiek "gyvuoja" oro masė) galėtų pasiekti Lietuvą.

# 1.4 <sup>137</sup>Cs antrinis pakėlimas į orą nuo dirvožemio paviršiaus

<sup>137</sup>Cs antrinis pakėlimas nuo dirvožemio paviršiaus į orą buvo stebimas nuo pat branduolinio ginklo bandymų atmosferoje pradžios. Po avarijos Černobylio AE užterštose teritorijose buvo stebimi intensyvūs radionuklidų antrinio pakėlimo nuo dirvožemio paviršiaus procesai. Per kelis metus po avarijos radionuklidų antrinio pakėlimo koeficientai greitai mažėjo nuo  $10^{-5}$  iki  $10^{-8}$ - $10^{-10}$  m<sup>-1</sup> ir vėliau beveik nekito [48, 49].

8 pav. pateikiami dulkių, <sup>137</sup>Cs nešėjų, antrinio pakėlimo nuo dirvožemio paviršiaus koeficientai skirtingose Europos matavimų stotyse 1986-1995 metais [43].



8 pav. Dulkių, <sup>137</sup>Cs nešėjų, antrinio pakėlimo nuo dirvožemio paviršiaus koeficientai įvairiose matavimų stotyse Europoje 1986-1995 metais. *Šaltinis: Garger, 2006*.

Kaip seka iš 8 pav., po Černobylio AE avarijos didėlėse teritorijose sistemoje "dirvožemio paviršius – oras" greitai nusistovėjo pusiausvyra tarp dulkių, radionuklidų nešėjų, srauto iš oro į dirvožemio paviršių ir atgal nuo dirvožemio paviršiaus į orą.

Užterštose po Černobylio AE avarijos teritorijose atskirais laikotarpiais buvo stebimi <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai, susiję su aerozolio dalelių, <sup>137</sup>Cs nešėjų, antriniu pakėlimu nuo dirvožemio paviršiaus į orą esant antropogeninei veiklai, pavyzdžiui, sezoniniams žemės ūkio darbams ar intensyviam transporto judėjimui. Vykdant žemės ūkio darbus <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore padidėja nuo šimto iki kelių tūkstančių kartų, palyginus su <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų

padidėjimu ore dėl vėjo sukelto dulkių antrinio pakėlimo. Dulkių pakėlimas nuo ariamųjų plotų labiausiai priklauso nuo dirvožemio tipo ir drėgnumo [50, 51].

### 1.5 Gaisrai ir medienos deginimas – <sup>137</sup>Cs emisijos į pažemio orą šaltiniai

<sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai po Černobylio AE avarijos užterštose teritorijose taip pat siejami su aerozolio dalelių, <sup>137</sup>Cs nešėjų, susidarymu ir pernaša degant miškams ar deginant radionuklidais užterštą medieną ar žolę. Po Černobylio AE avarijos <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija 4,2 milijonų ha miško plotuose Baltarusijoje, Rusijoje ir Ukrainoje siekė 40 kBq m<sup>-2</sup>. Du trečdalius Černobylio AE 30 km stebėjimo zonos užima miškai ir pievos.

Černobylio AE 30 km stebėjimo zonoje per metus įvyksta 40-110 gaisrų. 1992-1994 metais joje išdegė 2,4-3,9 tūkst. ha, 2000 m. gegužės mėn. išdegė 1,5 tūkst. ha miškų ir durpynų. Dideli gaisrai įvyko 2001-2002 metais [43]. Paskutinį kartą 60 ha miško 10 km atstumu nuo Černobylio AE išdegė 2007.03.21-22. Visais atvejais gaisrų plitimą skatina sausi ir vėjuoti orai [52]. Ypatingai didelę grėsmę kelia padegami Černobylio AE 30 km stebėjimo zonoje palikti namų ūkiai, kai įsiliepsnoja atviro tipo radioaktyviųjų atliekų kapinynai ar prasideda ilgą giluminį degimą palaikantys durpynų gaisrai [53].

Degant miškui, <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore šalia gaisro židinio šuoliškai padidėja 200-700 kartų, net iki kelių Bq m<sup>-3</sup>. Gaisrų Černobylio AE stebėjimo zonoje 1992.07.28-31 modeliavimo rezultatai rodo, kad su dūmais į orą galėjo patekti iki kelių procentų biomasėje akumuliuoto <sup>137</sup>Cs, o <sup>137</sup>Cs emisija nuo paviršinio šaltinio (gaisravietės) gali siekti 10<sup>6</sup> Bq s<sup>-1</sup> [54].

Gaisrų metu radionuklidai prikimba prie susidarančių aerozolio dalelių ir oro masėmis gali būti pernešami toli nuo gaisro židinio, ir tuomet radionuklidų aktyvumo koncentracijos aplinkos sanduose regiono ar lokaliu masteliu išsilygina [55, 56]. 5 lentelėje pateikiama gaisrų statistika Lietuvoje 2005-2008 metais [57].

	Išdegęs plotas, km <sup>2</sup>					
Gaisro židinys	2005.03.29-	2006.04.07-	2007.03.14-	2008.03.29-		
	07.19	08.18	06.25	08.12		
Pieva	25,98	326,11	28,90	49,27		
Miškas, miško paklotė	0,58	12,44	0,80	1,11		
Durpinga pieva	0,97	9,34	0,85	0,79		
Durpynas	0,20	0,33	<0,01	1,87		
Ražienos	0,15	1,43	0,06	0,78		

5 lentelė. 2005-2008 metais gaisruose išdegę Lietuvos teritorijos plotai. Šaltinis: *VPGT*, 2005-2008.

Kaip matyti 5 lentelėje, gaisrų metu labiausiai pagal plotą išdega pievos. Tačiau gaisrų metu miškuose sudega daugiau biomasės. Augmenijoje didžiausios <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos yra išmatuotos spygliuose, lapuose ir jaunose šakelėse. Laikui bėgant, miško paklotė tampa svarbiu radionuklidų akumuliacijos šaltiniu. Gaisro metu temperatūra joje pasiekia 700-800 °C, kas pakanka, kad vyktų <sup>137</sup>Cs sublimacija (550-670 °C), o vėstant – <sup>137</sup>Cs nukleacija ir smulkių kondensacinių dalelių susidarymas. Netgi tuo atveju, kai viršutinis gaisras užgesintas, paklotės smilkimas išlieka aerozolio dalelių emisijos į orą šaltiniu [58].

Aerozolio dalelių bandiniuose, surinktose 2002.08.30 pažemio ore po beveik du mėnesius trukusių didelių gaisrų, bimodalinio dalelių pasiskirstymo maksimumas buvo ties 0,1-0,15  $\mu$ m (paklotės degimas) ir 3-5  $\mu$ m (viršutinis gaisras) [59]. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore sumažėja eile nutolus 2-2,5 km nuo gaisro židinio [60].

Dideliems miškų gaisrams būdingas galingų konvekcinių debesų susidarymas virš gaisro židinių. Dalelių koncentracija tokiuose debesyse yra gana didelė, apie 10<sup>4</sup>-10<sup>6</sup> m<sup>-3</sup>. Tokių debesų apatinė riba yra 2-5 km aukštyje, o viršutinė gali siekti net tropopauzę (9-11 km). Manoma, kad galingos konvekcinių debesų sistemos kaip tik ir atsakingos už radionuklidų tolimąją pernašą nuo gaisro židinių [61]. Naujausiose publikacijose skelbiama aerozolio dalelių pernaša iš degančių Amazonės upės baseine miškų net iki Pietų Afrikos [62]. Registruoti atvejai, kai Černobylio AE avarijos užterštose teritorijose didelių gaisrų metu susidariusios aerozolio dalelės, radionuklidų nešėjos, buvo aptiktos Lietuvoje [63].

Pastaruoju metu akcentuojamas dar vienas radionuklidų išlaisvinimo iš biomasės procesas – radionuklidais užterštos medienos kaip kuro deginimas. Priešingai nei miškų gaisrai, kurie priskiriami prie ypatingų įvykių, radionuklidais užterštos medienos deginimas yra nuolatinis radionuklidų emisijos šaltinis į orą per visą šildymo sezoną, kuris Rytų Europos regione trunka iki pusmečio. Vien Baltarusijoje 80 tūkst. namų ūkių šildymui kasmet sunaudoja 550 t malkų, neįskaitant apie 600 malkomis kūrenamų katilinių [64].

Miškų gaisro metu iš dujinės fazės susidaro submikroninio dydžio aerozolio dalelės. Pažemio oro aerozolio bandiniuose, surinktuose po miškų gaisrų avarijos Černobylio AE užterštose teritorijose <sup>137</sup>Cs dalis aerozolio dalelių vandenyje tirpioje frakcijoje siekė 60 % [65].

Sistemoje "dirvožemis – augalas" <sup>137</sup>Cs kaupiasi pagrindinai augalų antžeminėse dalyse, kurioms atmirus ir džiūstant, susidaro aerozolio dalelės. Augalinės kilmės aerozolio dalelės nuolat papildo atmosferos aerozolio išteklius ir sudaro apie 30 % visų atmosferinių dalelių kiekio. Be to, tyrimai po Černobylio AE avarijos užterštose teritorijose parodė, kad pavasarį <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore koreliuoja su spygliuočių žiedadulkių kiekiu pažemio ore [66]. Radionuklido akumuliacija žiedadulkėse susijusi su kalio pavadavimu ceziu biocheminėse reakcijose. 1 m<sup>2</sup> pušyne žydėjimo sezono metu susidaro apie 1,5 x10<sup>9</sup> žiedadulkių, kurios tuo metu sudaro iki 95 % visų dalelių pažemio ore. Užterštame pušyne <sup>137</sup>Cs emisija su žiedadulkėmis siekia 360 Bq m<sup>-2</sup> metai<sup>-1</sup> [53]. Su stambiomis žiedadulkėmis, kurios siekia iki 50 µm, radionuklidai pernešami pažemio ore lokaliu masteliu [67].

#### 1.6 Dirbtinių radionuklidų išlėkos į atmosferą iš Ignalinos AE

Ignalinos atominėje elektrinėje (Ignalinos AE) yra du 1500 MW elektrinės galios (4800 MW šiluminės galios) šiluminių neutronų vandens-grafito kanaliniai RBMK tipo reaktoriai. Pirmo bloko reaktorius buvo pradėtas eksploatuoti 1983.12.31, o antrasis – 1987.08.31. Pirmo bloko reaktorius sustabdytas 2004.12.31, o antrą numatoma sustabdyti 2009.12.31.

RBMK reaktoriaus, veikiančio vieno kontūro principu, ypatumas tas, kad dalis dalijimosi produktų [68, 69] ir dalis korozinių radionuklidų [70, 71], įveikia garo ir vandens ribą garo separatoriuje ir po turbinų kondensatoriaus su ežektorinėmis dujomis patenka į ventiliacinę sistemą.

Turbinos įėjimo slėgis yra 6,5 MPa, temperatūra 280 °C. Maksimalus vandens ir garo srautas yra 2100 kg s<sup>-1</sup> reaktoriui veikiant 4200 MW šiluminiu pajėgumu. Vandens kondensatoriuje garų ir dujų srautas aušinamas Drūkšių ežero vandeniu nuo 255-265 °C iki 5-15 °C žiemą ir 15-33 °C vasarą temperatūros, išlaikant slėgį, atitinkantį persotintų vandens garų slėgį. Soties garų slėgis kondensatoriuje tokiu atveju susidaro 0,0033 - 0,006 MPa, garo srautas apie 111 kg s<sup>-1</sup>. Vandenyje po kondensacijos esant didelėms jonizuojančiosios spinduliuotės dozėms atsiranda dujinių priemaišų - vandenilio, angliarūgštės, azoto, amoniako, inertinių dujų, kietųjų dalelių ir druskų [72, 73]. Dujų atskyrimas nuo vandens vyksta turbinų kondensatoriuose ir ežektoriuose. Dujų ir aerozolio dalelių mišinys patenka į ventiliacinės sistemos įrenginius. Tai yra ypač svarbus procesas, kadangi čia susidaro palankios sąlygos aerozolio dalelių formavimuisi. Šiame fizikiniame cheminiame procese (vandens garinimas ir kondensacija) radionuklidų patekimą į aplinką lemia jų pirmtakų ir skilimo produktų savybės.

Žemiau pavaizduotos kai kurių dalijimosi produktų (<sup>137</sup>Cs ir <sup>134</sup>Cs) ir korozinių radionuklidų (<sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn) susidarymo ir skilimo grandinėlės. Šių radionuklidų gama spinduliavimas registruojamas kaip Ignalinos AE ventiliacinės sistemos ore, taip ir pažemio ore Ignalinos AE poveikio zonoje.



Pateiktos grandinėlės gali paaiškinti ilgaamžių radionuklidų kelią branduolinio reaktoriaus aušinimo ir ventiliacinėje sistemoje.

Supaprastinta Ignalinos AE branduolinio reaktoriaus aušinimo ir ventiliacinės sistemos normalios eksploatacijos režime schema pavaizduota 9 pav. [73-75].



9 pav. Supaprastinta Ignalinos AE branduolinio reaktoriaus aušinimo ir ventiliacinės sistemos normalios eksploatacijos režime schema. 1 - branduolinio reaktoriaus technologiniai kanalai, 2 - būgnas-separatorius, 3 - turbina, 4 - turbinų kondensatoriai, 5 - ežektorius, 6 - kondensatorius, 7 - degaus mišinio deginimo įrenginys, 8 - išlaikymo kamera, 9 - elektrokaloriferis, 10 - šildytuvas ir kondensatorius, 11- filtras aerozolio dalelių sulaikymui, 12 – aktyvuotos anglies adsorberis, 13 - ceolito adsorberiai, 14 – aktyvuotos anglies adsorberiai, 15 - filtrai, 16 - ventiliacinis kaminas. *Šaltiniai: Kaliatka, 1998; IAE, 2000.*

RBMK reaktoriaus priverstinės cirkuliacijos kontūre iki 85 % korozinių radionuklidų yra sukibę su smulkiomis koloidinėmis dalelėmis (< 1  $\mu$ m), likusi radionuklidų dalis yra joninėje formoje. Dujinius pirmtakus turintys dalijimosi produktai, atvirkščiai, šilumnešyje yra daugiausiai joninėje formoje (apie 80 %), o likusi dalis yra sukibusi su koloidinėmis dalelėmis.

Būgnuose-separatoriuose vandens ir garo fazių sąlyčio riboje beveik visi dujiniai radionuklidai ir dalis joninėje formoje esančių radionuklidų pereina iš šilumnešio į garą. Tai įvyksta dėl skirtumų tarp radionuklido pasiskirstymo vandenyje ir gare, radionuklido nešėjų išnešimo su garo lašeliais ir kitų fizikinių ir cheminių procesų. Santykis tarp Kr izotopų aktyvumo gare ir vandenyje yra apie  $6,0 \pm 1,0$ . Joniniams dalijimosi produktams šis santykis ženkliai mažesnis: <sup>137</sup>Cs -  $5,3 \times 10^{-3}$ , <sup>134</sup>Cs -  $4,5 \times 10^{-3}$ . Koloidinės dalelės beveik visos lieka šilumnešyje [76].

Iš turbinų kondensatorių radionuklidai išsiurbiami ežektoriais ir patenka į ventiliacinę sistemą. Ten pat periodiškai patenka radionuklidai iš reaktoriaus dujų kontūro ir saugos bei valdymo sistemų šaldymo kontūro. Toliau degaus mišinio deginimo įrenginyje sudeginami garo radiolizės metu susidaręs vandenilis ir deguonis. 6000 m<sup>3</sup> tūrio betoninėje kameroje radionuklidai išlaikomi apie 10 val. Kameroje vyksta inertinių dujų radionuklidų skilimas, dukterinių radionuklidų susidarymas ir koaguliacija, atsirandant smulkioms aerozolio dalelėms (0,4-0,7 μm). Dalis iš dujinių pirmtakių susidariusių radionuklidų nusėda ant pluoštinių filtrų filtravimo stotyje, įrengtoje po kameros. Pagrindinė inertinių dujų radionuklidų dalis prieš išmetimą per ventiliacinį kaminą užlaikoma iki 20 val. ceolitu ir aktyvuota anglimi užpildytuose absorberiuose ir čia suskyla [77].

Per atominės elektrinės aukštuminį ventiliacinį kaminą radionuklidai išlekia į orą, turbulentiniais oro srautais išsklaidomi atmosferos pažemio oro sluoksnyje, kad radionuklidų koncentracijos atominių elektrinių poveikio zonos ore neviršytų didžiausių leistinų koncentracijų [78, 79]. Radionuklidų išlėkų efektyvus aukštis per 150 m aukščio ventiliacinį kaminą vasarą anticikloniniu orų sąlygomis gali siekti 300 m, o žiemą inversijos sąlygomis – 170 m [80].

Ignalinos atominės elektrinės pramoninėje aikštelėje be radionuklidų patekimo per aukštuminius ventiliacinius kaminus yra ir kiti radionuklidų emisijos šaltiniai į atmosferą. 6 lentelėje pateikiami išlėkų debitai ir <sup>60</sup>Co emisija iš visų galimų Ignalinos AE emisijos šaltinių 2000 metais [81].

Pastatas /	Išlėkų debitas, m <sup>3</sup>	<sup>60</sup> Co emisija,
ventiliacinio kamino aukštis, m	$h^{-1}$	kBq
Pagrindinis pastatas, 150 m	2 900	470 000
Skystųjų radioaktyviųjų atliekų tvarkymo kompleksas, 75 m	300	195
Centralizuoto remonto cechas, stogas	165	165
Specialaus transporto deaktyvavimo pastatas, stogas	30	45
Skalbykla, stogas	10	5
Kietųjų radioaktyviųjų atliekų saugykla, stogas	10	nėra duomenų

6 lentelė. 60 Co emisija iš IAE emisijos šaltinių 2000 m. Šaltinis: IAE, 2000.

Kaip matyti 6 lentelėje, Ignalinos AE branduolinių reaktorių ventiliaciniai kaminai.yra pagrindinis radionuklidų emisijos šaltinis į atmosferą.

7 lentelėje pateikti duomenys apie aerozolinių radionuklidų aktyvumus Ignalinos AE išlėkose per ventiliacinius kaminus 1985-2006 metais [82, 83]. Paskutinėje lentelės eilutėje pateikti Ignalinos AE išlėkų ribiniai aktyvumai (pagal LAND 42-2001) [84].

7 lentelė. Radionuklidų aktyvumai Ignalinos AE išlėkose per ventiliacinius kaminus 1985-2006 metais. *Šaltiniai: Gusev, 1993; IAE, 2007.* 

Matai			Radionuk	lidų aktyvi	umas, MBc	1	
Metal	Viso*	<sup>60</sup> Co	<sup>137</sup> Cs	<sup>54</sup> Mn	<sup>131</sup> I	<sup>90</sup> Sr	$^{134}Cs$
1985	38000	_	_	_	_	_	_
1986	8780	_	_	_	_	_	_
1987	3330	101	496	201	_	44	215
1988	3550	152	940	311	_	78	673
1989	1740	_	_	_	_	_	_
1990	980	_	_	_	_	_	_
1991	9730	4480	984	710	262	5	72
1992	2020	361	351	104	44	14	15
1993	1310	289	263	189	11	10	15
1994	5520	1290	191	245	136	10	83
1995	3850	2130	529	457	124	15	10
1996	1560	1050	91	39	73	11	21
1997	1150	420	221	238	36	10	8
1998	766	205	99	60	37	50	2
1999	643	233	80	156	2	41	1
2000	1200	468	132	312	2	45	1
2001	1050	299	177	179	17	42	2
2002	701	192	117	95	67	59	3
2003	803	226	93	143	14	45	15
2004	842	232	66	109	28	60	13
2005	559	103	127	33	5	56	1
2006	691	102	102	56	124	59	2
LAND 4	12-2001	1,8×10 <sup>6</sup>	8,3×105	3,1×107	1,8×10 <sup>6</sup>	1,4×10 <sup>6</sup>	1,2×106

\* išskyrus inertinių dujų radionuklidus; – duomenų nėra

Kaip matyti 7 lentelėje, radionuklidų aktyvumai išlėkose yra 10<sup>4</sup>-10<sup>6</sup> kartų mažesni nei jų ribiniai aktyvumai. Kasmet stebima radionuklidų aktyvumo išlėkose mažėjimo tendencija.

Prognozuojama, kad eksploatuojant Ignalinos AE naują kietųjų atliekų tvarkymo ir saugojimo kompleksą didžiausia metinė <sup>60</sup>Co emisija į atmosferą sieks iki

 $3,4\times10^8$  Bq, o  $^{137}$ Cs– iki  $2,0\times10^6$  Bq [85]. 8 lentelėje pateikiama radionuklidų emisija į atmosferą panaudoto branduolinio kuro perkrovimo iš Ignalinos AE išlaikymo baseinų į CONSTOR konteinerius metu atskiruose etapuose [86, 87].

8 lentelė. <sup>3</sup>H, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs emisija į atmosferą panaudoto branduolinio kuro perkrovimo iš Ignalinos AE išlaikymo baseinų į CONSTOR konteinerius metu. *Šaltinis: Nukem, 2006.* 

Etanas	Radionuklidų aktyvumas, Bq			
Etapas	$^{3}\mathrm{H}$	$^{134}Cs$	<sup>137</sup> Cs	
Sandarių panaudoto kuro rinklių perkrovimas AE	6,9×10 <sup>9</sup>	$4,4 \times 10^{5}$	$1,9 \times 10^{6}$	
blokuose		,	,	
Nesandarių panaudoto kuro rinklių perkrovimas	$3.8 \times 10^{12}$	$2.4 \times 10^{8}$	$1.0 \times 10^{9}$	
AE blokuose	5,8×10	2,4×10	1,0×10	
Mechaniškai pažeistų ir eksperimentinių				
panaudoto kuro rinklių perkrovimas AE	$7,7 \times 10^{11}$	$3,8 \times 10^5$	$1,8 \times 10^{6}$	
blokuose	,	,	,	
Panaudoto kuro rinklių perkrovimas B1 pastato	1.0.1011	$(10^{5})$	$2.0 \times 10^{6}$	
"karštoje" kameroje	1,0×10	0,0×10	2,9×10	
Viso:	$4,7 \times 10^{12}$	$2,4 \times 10^{8}$	1,0×10 <sup>9</sup>	

Iki 2010 metų Ignalinos AE bus sukaupta apie 30 tonų panaudotų pluoštinių filtrų (be rėmų). Vidutinė <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracija filtruose siekia 380 kBq kg<sup>-1</sup>, <sup>137</sup>Cs – 160 kBq kg<sup>-1</sup>. Atlikus panaudotų filtrų tvarkymo studiją nuspręsta atsisakyti jų deginimo ir pasirinkta technologija laidoti filtrus paviršiniuose kapinynuose šalia Ignalinos AE [88]. Šiuolaikinės inžinierinės priemonės, kad ir kokios pažangios jos būtų, nesulaiko radionuklidų patekimo iš kapinynuose palaidotų radioaktyviųjų atliekų pakuočių į aplinką.

## 1.7 <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore eigos analizė

Nuolatiniai radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimai vykdomi pasauliniame Branduolinio ginklo neplatinimo sutarties organizacijos sukurtame pasauliniame radionuklidų stebėsenos aplinkoje tinkle, duomenys saugomi ir analizuojami duomenų apdorojimo centruose [20, 89]. Daugelyje išsivysčiusių šalių sukurtos nacionalinės laboratorijos, vykdančios analogiškus matavimus. Praktiškai visų atominių elektrinių aplinkoje veikia žinybinės laboratorijos, turinčios stacionarius stebėjimo postus. Apibendrinti matavimų rezultatai pateikiami mokslinėse konferencijose ir publikacijose. Kaip taisyklė, <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore eigai skiriama daugiausiai dėmesio.

10 pav. pateikiamos vidutinės metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore ir <sup>3</sup>H aktyvumo koncentracijos krituliuose, suvidurkintos TSRS (po 1991 metų Rusijos Federacijos) teritorijai 1954-1995 metais eiga [90].



10 pav. Vidutinės metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore ir <sup>3</sup>H aktyvumo koncentracijos krituliuose, suvidurkintos TSRS (po 1991 metų Rusijos Federacijos) teritorijai 1954-1995 metais eiga. *Šaltinis: Makhonko, 2001*.

10 pav. nurodyti metai, kai Kinijos Liaudies Respublika vykdė branduolinio ginklo sprogdinimus atmosferoje (vertikalios rodyklės). Kaip matyti, 1963-1981 metais <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore koreliuoja su <sup>137</sup>Cs patekimu į atmosferą branduolinio ginklo bandymų atmosferoje Šiaurės pusrutulyje laikotarpiu. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore padidėjimas 1986 metais siejamas su radionuklido patekimu į atmosferą įvykus avarijai Černobylio AE. Kaip matyti, nepertraukiami radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimai atspindi visų reikšmingų radionuklido patekimo į aplinką įvykių istoriją.

Radionuklido aktyvumo koncentracijų ore ir iškritose eigą buvo bandoma aprašyti matematiškai, aproksimuojant eksperimentinius rezultatus eksponentine lygtimi ir skaičiuojant radionuklido aktyvumo koncentracijų pažemio ore mažėjimo pusiau trukmes ( $T_{1/2}$ ):

$$C = C_0 e^{-\frac{\ln 2(t-t_0)}{T_1/2}},$$
(1)

čia  $C_0$  ir C – radionuklido aktyvumo koncentracijos pažemio ore pradiniu laiko momentu  $t_0$  ir po laiko t, atitinkamai,  $T_{1/2}$  – radionuklido aktyvumo koncentracijų pažemio ore mažėjimo pusiau trukmė.

Įvertinta, kad patekusio į stratosferą <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore mažėjimo pusiau trukmė yra apie 1-2 metai, o <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos troposferoje mažėjimo pusiau trukmė yra apie 1 mėnesį [91].

Vidutinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore matavimų Katowice 1990-1999 metais matavimų rezultatai pateikti darbe [92]. Graikijoje 1987-1992 metų laikotarpyje vykdytų <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore eiga aprašoma eksponentine funkcija su radionuklido pašalinimo pusamžiu 1,33 metų [93].

Preciziškų, ilgamečių, nuo 1962 iki 2001 metų, vidutinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore matavimų Šiaurės Vokietijoje istoriniai rezultatai pateikti darbe [94] (11 pav.).



11 pav. <sup>137</sup>Cs ir <sup>239+240</sup>Pu aktyvumo koncentracijos ore Šiaurės Vokietijoje 1962-2000 metais. *Šaltinis: Wershofen, 2001.*
Skirtingose geofizinėse stotyse gaunami skirtingi <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore mažėjimo pusiau trukmės rezultatai, kas susiję su skirtingais stebėjimų laikotarpiais ir stočių nuotoliu nuo <sup>137</sup>Cs šaltinių [95, 96].

Praėjus daugeliui metų po branduolinio ginklo bandymų atmosferoje ir virš 20 metų po avarijos Černobylio AE iki šiol ir, tikriausiai, dar ilgą laiką <sup>137</sup>Cs išlieka vienu radiologiškai svarbių dirbtinių radionuklidų, nuolat registruojamų viso pasaulio oro monitoringo stotyse.

### 2. Tirpios aerozolio dalelės atmosferoje

Atmosferoje <sup>137</sup>Cs ir kiti radionuklidai yra prisijungę prie aerozolio dalelių ir kartų su jomis dalyvauja atmosferos cirkuliacijos ir savivalos procesuose. Radionuklidų elgsena aplinkoje priklauso nuo aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, fizikinių ir cheminių savybių.

Darbe [25] pateikiamos skirtingų pagal prigimtį aerozolio dalelių charakteristikos ir aerozolio dalelių masės kiekiai tirpioje frakcijoje (9 lentelė).

9 lentelė. Skirtingų pagal prigimtį aerozolio dalelių charakteristikos. N – aerozolio dalelių skaitinė koncentracija (cm<sup>-3</sup>),  $\varepsilon$  – aerozolio dalelių masės procentas tirpioje frakcijoje (%). *Šaltinis: Raes et al., 2000.* 

Charakteristika	Jūrinės oro masės	Uzterstos kontinentinės oro masės	
Aerozolio dalelių Aitkeno moda	<i>N</i> , cm <sup>-3</sup>	300	2800
Aerozolio dalelių akumuliacinė moda	N, cm <sup>-3</sup>	70	350
Aerozolio dalelių masės procentas tirpioje frakcijoje	<i>E</i> , %	100	28

Tipinio kontinentinio užterštumo sąlygomis aerozolio dalelėse vidutinis aerozolio dalelių masės kiekis tirpioje frakcijoje yra 28%. Švarioje jūrinėje oro masėje vidutinis aerozolio dalelių masės kiekis tirpioje frakcijoje yra 100% [97, 98]. Kaip matyti iš lentelės, kontinentinėse ir jūrinėse oro masėse visuomet stebima tirpių aerozolio dalelių frakcija.

Vandenyje tirpios dalelės gaminasi aerozolio dalelių susidarymo ir augimo epizoduose [99]. Pastarieji procesai vyksta dalyvaujant atmosferos vandens

molekulėms, kurios dėl elektrinio krūvio dipoliškumo sukuria stiprių paviršinio įtempimo jėgų laikomas stabilias vandens molekulių ir priemaišų struktūras (miceles, arba aerozolio daleles). Kai kurios priemaišos (pvz., metalų nitratai, sulfatai, chloridai) gerai absorbuoja vandens molekules ir persotintų vandens garų sąlygomis gali augti toliau. Tokios 0,1 µm dydžio dalelės yra ir debesų kondensacijos centrai. Palankiomis debesų susidarymo sąlygomis šios dalelės išauga iki 2 mm ir daugiau dydžio lietaus lašų. Nustatyta, kad kuo labiau aerozolio dalelės yra higroskopiškos, tuo lengviau jos išplaunamos iš oro krituliais [100].

Aerozolio dalelių pasiskirstymas tarp tirpios ir netirpios frakcijų nustatomas jūros ir miesto kontinentinėse oro masėse [98]. Aerozolio dalelių pasiskirstymas tarp tirpios ir netirpios frakcijų nustatomas tirpinant vandeniu ant filtro surinktas aerozolio daleles. Darbe [17] "karštų" "Černobylinių" dalelių tirpios frakcijos nustatymui buvo naudojamas trijų filtrų paketas. Darbuose [101, 102] aerozolio dalelių pasiskirstymo tirpioje ir netirpioje frakcijose nustatymui naudota Tessier pakopinės ekstrakcijos metodika. Darbe [103] filtrais surinktos organinės anglies dalelės buvo tirpinamos vandeniu, ir tirpių dalelių frakcija buvo nustatoma cheminiais metodais.

Aerozolio bandiniuose, surinktuose Ignalinos AE veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame kamine 1999-2001 metais, <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn dalis vandenyje tirpioje frakcijoje buvo 78 %, 99 % ir 100 %, atitinkamai. Tuo pačiu laiku Ignalinos AE regione FI stotyje surinktuose pažemio oro aerozolio dalelių bandiniuose <sup>60</sup>Co ir <sup>137</sup>Cs dalis vandenyje tirpioje frakcijoje buvo rasta mažiau – 22 ir 32 %, atitinkamai [16, 104].

#### 2.1 Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, tirpumas plaučių skystyje

Sprendžiant radiacinės saugos problemas svarbu žinoti aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, tirpumą plaučių skystyje. Kasdien su įkvėptu oru į žmogaus plaučius patenka vidutiniškai iki 100 milijardų aerozolio dalelių. Aerozolio dalelių elgsena žmogaus kvėpavimo sistemoje yra atskiros mokslo šakos *inhaliacinės toksikologijos* objektas; kaip ir *radiologijoje*, inhaliaciniai efektai vertinami įvedant dozės sąvoką.

Žmogaus kvėpavimo sistema pasižymi sudėtinga sandara. 10 lentelėje pateikiami aerozolio dalelių nusėdimo greičiai ir buvimo laikai kvėpavimo sistemos atskirose dalyse [105].

	Kvėpav	imo sistemos	Aerozolio dalelių			
Kvėpavimo sistemos dalis	Atsišakoji mu kiekis	Skersmuo,	Ilgis,	Paviršius, $cm^2$	nusėdimo greitis,	buvimo laikas,
	πηά κισκιε	111111	111111	CIII	mm $s^{-1}$	ms
Trachėja	1	18	120	2,5	3900	30
Bronchai	2000	1,1	3,9	20	520	7,4
Bronchiolė	$66 \times 10^{3}$	0,6	1,6	180	54	210
Alveolių sankaupa plaučiuose	8×10 <sup>6</sup>	0,41	0,5	72×10 <sup>3</sup>	0,9	550

10 lentelė. Aerozolio dalelių nusėdimo greičiai ir buvimo laikai žmogaus kvėpavimo sistemos atskirose dalyse. *Šaltinis: Swietlicki, 2006.* 

Didesnės nei 10 µm dydžio aerozolio dalelės sulaikomos mikropluošteliais padengtuose viršutiniuose kvėpavimo takuose (trachėja, bronchai) ir kartu su išskyromis palyginus greitai pašalinamos iš kvėpavimo sistemos į skrandžio ir žarnyno sistemą.

Iki 20 % įkvėptų aerozolio dalelių patenka į gilesnius kvėpavimo takus (bronchiolės, alveolių sankaupos, alveolės). Šiose kvėpavimo sistemos dalyse susidaro vandens garo įsotinimui palankios sąlygos. Nustatyta, kad vandenyje tirpios aerozolio dalelės kelyje iki alveolių padidėja beveik du kartus [106]. Plaučių alveolėse vyksta dujų apykaitos procesai, o bendras alveolių paviršiaus plotas siekia 75 m<sup>2</sup>. Vandenyje tirpių ir netirpų aerozolio dalelių elgsena plaučių alveolėse yra skirtinga, kas lemia skirtingas žmogaus vidinės apšvitos dozes [107]. 12 pav. pateikiama vandenyje tirpių ir netirpių aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, elgsenos alveolėse iliustracija.

# Vandenyje tirpios aerozolio dalelės



Po nusėdimo ant alveoliu, aerozolio dalelės sąveikauja su alveolių epitelinėmis lastelėmis, ištirpsta jų skystyje, o aerozolio dalelėse inkorporuoti radionuklidai išlaisvinami ir difunduoja per membranas lasteliu i krauja. Radiologinis poveikis sveikatai priklauso nuo aerozolio dalelių, radionuklidu nešėjų, kiekio daleliu alveolėse. masės ir cheminės sudėties.



Aerozolio daleliu fizikinės ir cheminės savybės beveik nesikeičia. Dalelės su inkorporuotais radionuklidais difunduoja per alveolių epitelį ir patenka tiesiogiai i kraują. Radiologinis poveikis sveikatai priklauso nuo aerozolio dalelių, radionuklidu kiekio nešėjų, alveolėse ir dalelių paviršinių savybių.

12 pav. Vandenyje tirpių ir netirpių aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, elgsena alveolėse.

Kraujagyslė

Šiuolaikiniuose inhaliuotų aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, nusėdimo kvėpavimo takuose modeliuose skaičiuojami radionuklidų perėjimo iš įkvėptų su oru aerozolio dalelių į plaučių skystį koeficientai [108].

## **METODIKA**

Nuo 1977 metų pabaigos Ignalinos AE poveikio zonoje Fizikos instituto geofizinėje radioekologinio monitoringo stotyje (FI stotis) nepertraukiamai vykdomi radionuklidų aktyvumo koncentracijų pažemio ore ir iškritose matavimai (13 pav.).

Filtras Nr.1. Paleista 1977. precodico non 9d. 1630 sleping skirtumos +18 cm.

13 pav. Išrašas iš Fizikos instituto radioekologinio monitoringo stoties žurnalo. Užrašyta pirmo pažemio oro aerozolio bandinio ėmimo pradžia 1977.12.09.

FI stotis (N 55°34'03", E 26°35'26") yra 3,5 km į pietryčius nuo Ignalinos AE (14 pav.). Ignalinos AE 1 ir 2 blokų branduolinių reaktorių ventiliacinių kaminų koordinatės N 55°36'18", E 26°33'36" ir N 55°36'18", E 26°33'53", atitinkamai.



14 pav. Ignalinos AE 1 ir 2 blokų bei Fizikos instituto stoties (FI stotis) išsidėstymas vietovės plane.

Kaip žinoma, aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, koncentracija pažemio ore yra didžiausia 3-8 km atstumu nuo radionuklidų emisijos šaltinio [109]. FI stoties padėtis yra optimali registruojant iš Ignalinos AE 150 m aukščio ventiliacinių kaminų išlėkusių radionuklidų gama spinduliavimą, kai FI stotis yra Ignalinos AE pavėjinėje pusėje. 15 pav. pateikiama vėjų rožė Ignalinos AE regione (Ignalinos AE 30 km stebėjimo zonoje) 2005-2006 metais [83, 110].



15 pav. Vėjų rožė Ignalinos AE regione 2005 metais (kontūras) ir 2006 metais (kontūras pilkame fone). Spindulio ilgis atitinka vėjo krypties pasikartojamumą per metus. *Šaltinis: IAE, 2006; IAE, 2007. Nuotrauka: Google Earth, 2009.* 

#### 3.1 Pažemio oro aerozolio dalelių bandinių ėmimas

FI stotyje pro 0,9 m<sup>2</sup> ploto smulkiapluoštinį perchlorvinilo Petrianovo FPP-15-1,5 filtrą (Esfiltechno AS) nuolat siurbiamas pažemio oras ir kas savaitę paimami filtro sulaikytų aerozolio dalelių bandiniai (iki 1998 m. bandiniai buvo imami kas 3 dienas). Oro siurbimui naudojamas 1800-2100 m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> našumo aukšto slėgio išcentrinis ventiliatorius BBД-8. Vienam bandiniui paimti prasiurbiama vidutiniškai 250 000 - 300 000 m<sup>3</sup> oro. Filtras įrengtas nuo atmosferinių kritulių apsaugotame laikiklyje 1 m aukštyje nuo žemės paviršiaus.

Siurbiant pažemio orą, jame esančios aerozolio dalelės nusėda ant Petrianovo filtro pluoštelių ir prikimba prie jų dėl elektrostatinės traukos ir sąveikos su pluoštelių paviršiumi [111, 112]. Projektinis dalelių prašokimas pro filtrą ne daugiau 0,002-0,007 %, pluoštelių skersmuo 1,5 µm [113].

Oro siurbimo debitas nustatomas bandinio ėmimo pradžioje ir pabaigoje pagal slėgio skirtumą prieš ir po diafragmą, kuri įmontuota viduryje 6 m ilgio ir 30 cm skersmens ventiliatorių ir filtro laikiklį jungiančiame vamzdyje. Eksperimentiškai įvertinta oro debito priklausomybė nuo siurbimo laiko įvairioms oro ir filtro užterštumo sąlygoms. Oro debito santykinė paklaida neviršija 10 %.

Paimti bandiniai registruojami darbo sąsiuvinyje, supakuojami ir transportuojami į Fizikos instituto laboratoriją Vilniuje. Visi bandiniai dar kartą registruojami "Bandinių, atvežtų iš Ignalinos radioekologinio monitoringo stoties (Ignalinos r. Vosyliškių k.) į Fizikos institutą (Vilnius), registracijos žurnale", laikomi



kataloginėje spintoje kambario temperatūroje.

Eksponuoto filtro pluošteliai atskiriami nuo marlės padėklo ir presuojami 5 tonų hidrauliniu kėlikliu DG-5 (16 pav.) į cilindro formos tabletę (skersmuo D=40 mm, aukštis 15-30 mm, medžiagos tankis  $\rho =$ 0,9±0,1 g cm<sup>-3</sup>) (17 pav.).

16 pav. Hidraulinis kėliklis DG-5, skirtas suspausti Petrianovo filtrą į kompaktišką tabletę.



17 pav. Pažemio oro aerozolio dalelių bandinys, surinktas ant Petrianovo filtro (A), ir suspausta cilindro formos tabletė (B).

Radionuklidų aktyvumai bandiniuose išmatuojami gama spektrometriniu metodu [114], naudojant ORTEC gama spektrometrinę sistemą su gryno germanio detektoriumi GEM-30180-P-S (santykinis gama kvantų registravimo efektyvumas 30 %, energetinė skyra 1,9 keV / 1,33 MeV) su Gamma Gage tipo integruotu Diuaro indu. Suspaustas bandinys pritvirtinamas laikiklyje ir talpinamas mažo fono apsaugoje arti detektoriaus. Bandinio energetinis gama spektras išmatuojamas SNIP (Silena International S.p.A) daugiakanaliu analizatoriumi (4096 kanalų) [115].

Siekiant sumažinti foninių impulsų registravimo spartą energetiniame gama spektre, naudota daugiasluoksninė apsauga, susidedanti iš švino blokų (sienelės storis 100 mm), vario (1 mm) ir Cd (1 mm) lakštų ir gyvsidabriu užpildyto hermetiško indocilindro (sienelės storis 25 mm). 18 pav. pateikti foniniai gama spektrai be apsaugos ir su apsauga.



18 pav. Foniniai energetiniai gama spektrai be apsaugos (A) ir su apsauga (B). Matavimo trukmė 85000 s. Matavimo vieta – Fizikos institutas, Vilnius (165 m virš jūros lygio).

Foniniame gama spinduliuotės spektre matavimo patalpos ore esantys gamtiniai <sup>226</sup>Ra (<sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi) ir <sup>232</sup>Th skilimo produktai (<sup>228</sup>Ac, <sup>212</sup>Bi, <sup>212</sup>Pb, <sup>208</sup>Tl), <sup>40</sup>K ir elektronų-pozitronų anihiliacijos metu išspinduliuojami gama kvantai. Naudojant apsaugą, foninių impulsų registravimo spartą pavyksta sumažinti beveik du kartus.

Daugiakanalio analizatoriaus skalė kalibruojama naudojant <sup>137</sup>Cs (661,7 keV), <sup>60</sup>Co (1173,2 ir 1332,5 keV) ir <sup>152</sup>Eu taškinius OSGI tipo pamatinius šaltinius. Periodiškai energetinis kalibravimas tikslinamas pagal foninius energetinius gama spektrus. Šiuo tikslu energetiniame gama spektre parenkamos bene ryškiausios smailės: 609,3 keV (<sup>214</sup>Bi), 911,2 keV (<sup>228</sup>Ac), 1460,8 keV (<sup>40</sup>K), 1764,5 keV (<sup>214</sup>Bi), 2614,5 keV (<sup>208</sup>Tl). Periodiškai atliekama gama spektrometro patikra, naudojant etaloninius jonizuojančiosios spinduliuotės šaltinius (19 pav.).

Valstylics imoné		VALSTYBINĖ
Vilniaus metrologijor contras S.Duriaus ir S.Gireno 23 2038 Vilnius Tel. 306276		METROLOGIJOS TARNYBA
e (application) - Factoria Statistication - Factoria Statistication - Factoria Statistication - Factoria	PATIKROS LIUDIJIN	/IAS -
	Nr. 0599281	
Data	2005-07-19	
Puslapių skaičius		
MP pavadinimas, tipa matavimo ribos, tikslu	s, Nr., <b>y-Spektrometras</b> GEM-3018 umas TP11392B	0-P-S N <del>13</del> 8-
MP savininko pavadir	imas ir 💦 (.k. 111954455 Fiziko	s institutas
Houas afor adresas		
Patikros metodo žymi	PM 27451-87: MI-3/86: MP to	chninė dokumentacija
Patikros metodo žymi Naudotos etaloniněht naudotos etaloniněht	PM 27451-87: MI-3/86: MP to 10 Etaloniniai spec. y-šaltiniai Cs- 137 Ni 11120003-628042; Am-241 Nr080420 S50014	chniné dokumentacija 12791; K-40 Nr 2792;Cs-137 02-856002; Co-60 Nr171020
Patikros metodo žymi I Naudotos etalonin <b>čiri</b> pavadinimas, tipas, Ni	PM 27451-87: MI-3/86 : MP to 10 Etaloniniai spec. y-šaltiniai Cs- 137 N 11320003-628042; Am-241 Nr080420 r. 850014	ehninč dokumentacija 12791; K-40 Nr 2792; Cs-137 02-856002; Co-60 Nr171020
Patikros metodo žymi Naudotos etaloninški pavadinimas, tipas, Ni Patikros protokolo registracijos Nr., data	PM 27451-87: MI-3/86 : MP to 10 Etaloniniai spec. y-Saltiniai Cs- 137 Nt 111 20003-628042; Am-241 Nr080420 r. 850014 Protokolas Nr 183	2791; K-40 Nr 2792;Cs-137 02-856002; Co-60 Nr171020 2005-07-19
Patikros metodo žymi Naudotos etaloninški pavadinimas, tipas, Ni Patikros protokolo registracijos Nr., data Matavimo priemonė p (laboratorijos pavadin	PM 27451-87: MI-3/86 : MP tca 10 Etaloniniai spec. y-Saltiniai Cs- 137 Nr 41120003-628042; Am-241 Nr080420 r. 850014 Protokolas Nr 183 patikrinta DRMI imas)	2791; K-40 Nr 2792;Cs-137 02-856002; Co-60 Nr171020 2005-07-19
Patikros metodo žymi Naudotos etalonin <b>čiri</b> pavadinimas, tipas, Ni Patikros protokolo registracijos Nr., data Matevimo priemonė p (laboratorijos pavadin livada	PM 27451-87: MI-3/86 : MP tea 10 Etaloniniai spec. y-šaltiniai Cs- 137 Nr ATI 20003-628042; Am-241 Nr080420 r. 850014 Protokolas Nr 183 Protokolas Nr 183 Matikrinta DRMI itmas) Atiinka tipo reikale	ehninė dokumentacija (2791; K40 Nr 2792; Cs-137) 02-856002; Co-60 Nr171020 2005-07-19
Patikros metodo žymi Naudotos etalonin <b>čiri</b> pavadinimas, tipas, Ni Patikros protokolo registracijos Nr., data Matavimo priemonė p (laboratorijos pavadin Išvada Patikros liudijimas gal	PM 27451-87: MI-3/86 : MP to 10 Etaloniniai spec. y-šaltiniai Cs- 137 N ITI 20003-628042; Am-241 Nr080420 c. 850014 Protokolas Nr 183 patikrinta DRMI imas) Atiinka tipo reikala lioja iki	ehniné dokumentaciia 2791; K-40 Nr 2792; Cs-137 02-856002; Co-60 Nr171020 2005-07-19 2005-07-19
Patikros metodo žymi Naudotos etaloninikit pavadinimas, tipas, Ni Patikros protokolo registracijos Nr., data Matavimo priemonė p (laboratorijos pavadin Išvada Patikros liudijimas gal VIVENIAUS METROLOGIOS CLEDRATOR	PM 27451-87: MI-3/86 : MP ter 10 Etaloniniai spec. y-šaltiniai Cs- 137 Nr HT 20003-628042; Am-241 Nr080420 c. 850014 Protokolas Nr 183 Protokolas Nr 183 Atilinka tipo reikalz imas) Atilinka tipo reikalz ioja iki	ehninė dokumentacija 2791; K.40 Nr 2792; Cs.137 02-856002; Co.60 Nr171020 2005-07-19
Patikros metodo žymi Naudotos etalonin <b>ški</b> pavadinimas, tipas, Ni Patikros protokolo registracijos Nr., data Matavimo priemonė p (laboratorijos pavadin lšvada Patikros liudijimas gal NETROLOGIOS CEMTA DOKLAMENTAL IMPRATIROS LIBORATOR ZZSERTORNIS Metrologas	PM 27451-87: MI-3/86 : MP tca 10 Etaloniniai spec. y-Saltiniai Cs- 137 Nr H120003-628042; Any-241 Nr080420 c. 850014 Protokolas Nr 183 Protokolas Nr 183 Atilinka tipo reikala imas) Atilinka tipo reikala Solutional de la constructiones M1 Tothaitas metrotopes Clintautas Kandror- (data)	chninč dokumentacija (2791; K-40 Nr 2792; Cs-137) 02-856002; Co-60 Nr171020 2005-07-19 vimarns 19

19 pav. Darbe naudojamo gama spektrometro patikros liudijimo pavyzdys.

EMCAPLUS (Silena International S.p.A) programinės įrangos aplinkoje kompiuteryje automatiškai atliekama smailių paieška energetiniame spektre gama kvantų energijų intervale nuo 50 keV iki 2700 keV. Analizuojant energetinius gama spektrus, taikomas Gauso statistinės atrankos kriterijus simetrinės formos smailėms su šiomis prielaidomis: 1) gama kvantų sugerties smailės pagrindas lygus keturiskart smailės puspločiui, 2) impulsai smailėje pasiskirstę normaliai, 3) foninių impulsų skaičius atvirkščiai proporcingas gama kvanto energijai. Identifikuojamos tik tos smailės, kai impulsų skaičius pasirinktoje smailėje tris kartus viršija impulsų skaičiaus standartinį nuokrypį  $\sigma$ .

$$\sigma = \sqrt{N_{net} + N_b \left(1 + \frac{n_i}{n_e}\right)},\tag{2}$$

čia  $N_{net}$  – impulsų skaičius smailėje išskaičiavus foninius impulsus,  $N_b$  – foninių impulsų skaičius,  $n_i$  – daugiakanalio analizatoriaus kanalų skaičius smailėje,  $n_e$  – daugiakanalio analizatoriaus kanalų skaičius foniniams impulsams nustatyti (paprastai 5 kanalai iš smailės kairės ir dešinės pusės).

Smailės registravimo riba  $L_d$  – tai smailės identifikavimo kokybinis kriterijus, leidžiantis dar neatlikus realaus matavimo prognozuoti mažiausią impulsų skaičių smailėje, kad ją būtų galima identifikuoti kaip statistiškai patikimą smailę:

$$L_d = 2,71 + 4,65\sigma_b,$$
 (3)

čia  $L_d$  – smailės registravimo riba, esant 5 % tikimybei, kad smailė nebus identifikuota,  $\sigma_b$  – foninių impulsų smailėje standartinis nuokrypis.

Smailės kritinis lygis Lc – tai smailės identifikavimo kokybinis rodiklis, leidžiantis po matavimo atlikimo identifikuoti statistiškai patikimą smailę:

$$L_c = 2,33\sigma_b,\tag{4}$$

čia Lc – smailės kritinis lygis, esant 5 % tikimybei, kad smailė bus klaidingai identifikuota.

Tuo atveju, kai impulsų skaičius smailėje (išskaičiavus foninius impulsus)  $N > L_c$ , smailė identifikuojama kaip statistiškai patikima:

$$N = N \pm k\sigma_{net}, \tag{5}$$

čia  $\overline{N}$  – vidutinis impulsų, normaliai pasiskirsčiusių smailėje, skaičius, N – impulsų skaičius smailėje (išskaičiavus foninius impulsus), k – pasikliautinasis lygmuo,  $\sigma_{net}$  –

impulsų skaičiaus smailėje standartinis nuokrypis ( $\sigma_{net} = \sqrt{\sigma^2 + \sigma_b^2}$ ,  $\sigma$  – visų impulsų skaičiaus smailėje standartinis nuokrypis).

Tuo atveju, kai impulsų skaičius smailėje (išskaičiavus foninius impulsus)  $N < L_c$ , smailė neidentifikuojama ir apskaičiuojama impulsų skaičiaus  $\overline{N}$  viršutinė riba:

$$\overline{N} < N \pm k\sigma_{net},\tag{6}$$

Automatinės bandinio energetinio gama spektro analizės ataskaitos pavyzdys kartu su radionuklidų identifikavimo rezultatais pateikiamas 11 lentelėje.

11 lentelė. Pažemio oro aerozolio dalelių bandinio energetinio gama spektro analizės ataskaita ir radionuklidų identifikavimo rezultatai. Bandinys paimtas 2006.06.21-07.03 FI stotyje, prasiurbto pro filtrą oro tūris 268 600 m<sup>3</sup>, bandinio aukštis 22 mm, matavimo laikas 104 000 s.

[ Silena – EMCAPLUS 1.04.0 ] Pirm Rugsėjo 25 13:44:47 2006 Bandinio ID.: 3009 Matavimo data: 25/09/06 12:01:43	Paieškos intervalas: 50 -> 2648 keV Paieškos režimas: visos smailės Statistinis kriterijus: 3.00 FWHM: pagal kalibracinį failą
Matavimo data: 25/09/06 12:01:43	Smailių parametrai: pagal kalibracinį failą
Matavimo laikas: 103730.0 s	Spektro pavadinimas: SP100101.dat

Kanalas	Energija, keV	Nuo, keV	Iki, keV	FWHM, keV	Smailės plotas, impulsai	Paklai- da, %	Impulsų registravi- mo sparta, impulsai s <sup>-1</sup>	Radionu- klidas
1	2	3	4	5	6	7	8	9
344.70	238.14	234.43	241.85	1.86	1332	10.00	0.0128	<sup>212</sup> Pb
432.81	294.82	291.08	298.56	1.87	964.72	12.78	0.00930	<sup>214</sup> Pb
500.19	338.15	334.39	341.92	1.88	327.14	29.46	0.00316	<sup>228</sup> Ac
521.03	351.56	347.79	355.33	1.88	1819.6	6.13	0.0175	<sup>214</sup> Pb
693.86	462.72	458.90	466.55	1.91	162.57	43.54	0.00157	<sup>228</sup> Ac
716.59	477.34	473.51	481.17	1.92	76592	0.56	0.739	<sup>7</sup> Be
768.45	510.70	506.85	514.54	1.92	2583.8	3.94	0.0249	Anihil.
880.88	583.00	579.12	586.88	1.94	730.92	9.19	0.00705	<sup>208</sup> Tl
921.37	609.04	605.15	612.94	1.95	1802	4.73	0.0174	<sup>214</sup> Bi
1002.84	661.43	657.51	665.35	1.96	484.98	12.24	0.00468	<sup>137</sup> Cs
1105.04	727.16	723.21	731.11	1.98	192.92	25.60	0.00186	<sup>212</sup> Bi
1168.89	768.21	764.24	772.18	1.99	144.34	32.76	0.00139	<sup>214</sup> Bi
1210.51	794.97	790.99	798.96	1.99	183.57	25.04	0.00177	<sup>228</sup> Ac

1	2	3	4	5	6	7	8	9
1272.33	834.72	830.72	838.72	2.00	95.138	45.79	0.000918	<sup>54</sup> Mn
1312.11	860.30	856.29	864.31	2.01	121.71	35.90	0.00117	<sup>208</sup> Tl
1391.02	911.03	907.00	915.07	2.02	694.54	8.30	0.00670	<sup>228</sup> Ac
1426.30	933.72	929.67	937.76	2.02	102.25	40.78	0.000986	<sup>214</sup> Bi
1474.38	964.63	960.56	968.69	2.03	164.07	25.63	0.00158	<sup>228</sup> Ac
1480.77	968.74	964.68	972.80	2.03	398.95	12.46	0.00385	<sup>228</sup> Ac
1716.14	1120.05	1115.92	1124.18	2.07	565.4	9.10	0.00545	<sup>214</sup> Bi
1797.69	1173.47	1168.31	1176.62	2.08	117.37	32.31	0.00113	<sup>60</sup> Co
1899.48	1237.90	1233.71	1242.08	2.09	200.23	20.84	0.00193	<sup>214</sup> Bi
1966.19	1280.78	1276.58	1284.98	2.10	82.574	39.59	0.000796	<sup>214</sup> Bi
2046.76	1332.56	1328.34	1336.79	2.12	80.354	38.30	0.000775	<sup>60</sup> Co
2116.24	1377.22	1372.97	1381.47	2.13	150.08	20.36	0.00145	<sup>214</sup> Bi
2153.04	1400.87	1396.61	1405.12	2.13	62.667	43.18	0.000604	<sup>214</sup> Bi, <sup>228</sup> Ac
2245.83	1460.50	1456.22	1464.79	2.14	6654.1	1.89	0.0642	<sup>40</sup> K
2300.47	1495.62	1491.32	1499.92	2.15	44.951	47.65	0.000434	<sup>228</sup> Ac
2321.43	1509.08	1504.78	1513.39	2.15	95.028	26.45	0.000917	<sup>214</sup> Bi
2444.12	1587.93	1583.59	1592.27	2.17	75.763	30.65	0.000731	<sup>228</sup> Ac
2494.97	1620.61	1616.25	1624.96	2.18	36.32	55.84	0.000350	<sup>212</sup> Bi
2510.23	1630.41	1626.05	1634.77	2.18	50.089	40.24	0.000483	<sup>228</sup> Ac
2664.10	1729.28	1724.88	1733.68	2.20	119.89	19.60	0.00116	<sup>214</sup> Bi
2718.25	1764.07	1759.66	1768.49	2.21	664.68	6.48	0.00641	<sup>214</sup> Bi
2847.24	1846.94	1842.49	1851.39	2.23	57.501	34.17	0.000555	<sup>214</sup> Bi
3269.45	2118.17	2113.61	2122.73	2.28	67.359	27.43	0.000650	<sup>214</sup> Bi
3402.55	2203.66	2199.07	2208.26	2.30	199.55	12.99	0.00192	<sup>214</sup> Bi
3781.84	2447.25	2442.55	2451.94	2.35	53.218	29.99	0.000513	<sup>214</sup> Bi
4041.52	2613.99	2609.23	2618.75	2.39	1152.3	4.55	0.0111	<sup>208</sup> Tl

Radionuklidų skleidžiamų gama kvantų registracijos efektyvumas tabletės geometrijoje įvertintas formuojant 40 mm diametro skirtingo aukščio tabletes su žinomo aktyvumo OMACH tipo <sup>137</sup>Cs ir <sup>40</sup>K druskų milteliais (matricos tankis  $\rho \sim 0.9$  g cm<sup>-3</sup>) ir <sup>137</sup>Cs bei <sup>152</sup>Eu epoksidinės dervos plokštelėmis (matricos tankis  $\rho \sim 1.0$  g cm<sup>-3</sup>). 20 pav. grafiškai pateikiami gama kvantų registravimo efektyvumai tabletės geometrijoje. Gama kvantų registravimo efektyvumo santykinė paklaida neviršija 3 % (1  $\sigma$  pasikliautinasis lygmuo).



20 pav. Gama kvantų registravimo efektyvumai,  $\varepsilon$ , skirtingo aukščio suspausto filtro tabletei.

Radionuklido aktyvumas bandinyje, A (Bq), apskaičiuojamas pagal lygtį [116]:

$$A = \frac{\overline{N}}{t_m \varepsilon \gamma \eta} \cdot \frac{\lambda t_s}{1 - e^{\lambda t_s}} \cdot e^{\lambda \Delta t} \cdot \frac{\lambda t_m}{1 - e^{\lambda t_m}}, \tag{7}$$

čia  $\overline{N}$  – impulsų skaičius pasirinktoje gama energetinio spektro smailėje (s<sup>-1</sup>),  $\varepsilon$  – gama kvantų registravimo efektyvumas matavimo geometrijoje,  $\gamma$  – gama kvanto išspinduliavimo tikimybė radionuklido skilimo metu,  $\eta$  – aerozolio dalelių sulaikymo ant filtro efektyvumas,  $\lambda$  – radionuklido skilimo konstanta (s<sup>-1</sup>),  $t_s$ ,  $\Delta t$ ,  $t_m$  – bandinio ėmimo laikas, laikotarpis nuo bandinio ėmimo pabaigos iki matavimo pradžios, bandinio matavimo laikas (s), atitinkamai.

(7) lygties nariai *A*, *B*, *C* skirti perskaičiuoti radionuklido aktyvumą bandinio ėmimo momentu, atsižvelgiant į radionuklido skilimą bandinio ėmimo laikotarpiu (A), laikotarpyje nuo bandinio ėmimo iki matavimo (B) ir bandinio matavimo laikotarpiu (C).

Radionuklidų aktyvumo bandiniuose matavimų rezultatai statistikai apdorojami ORIGIN aplinkoje [117, 118].

Tipinė <sup>137</sup>Cs aktyvumo nustatymo pažemio oro aerozolio dalelių bandinyje statistinė matavimo paklaida yra 15-25 %; <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn – 25-35 % ir 35-45 %, atitinkamai; <sup>7</sup>Be aktyvumo nustatymo bandinyje statistinė matavimo paklaida yra apie 1 % (1  $\sigma$  pasikliautinasis lygmuo).

Radionuklido aktyvumo koncentracija ore pažemio oro aerozolio dalelių bandinio ėmimo laikotarpiu apskaičiuojama kaip radionuklido aktyvumo bandinyje ir prasiurbto pro filtro oro tūrio santykis. <sup>137</sup>Cs, <sup>54</sup>Mn, <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijų ore registravimo riba yra 0,1  $\mu$ Bq m<sup>-3</sup>, <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų ore registravimo riba yra 10  $\mu$ Bq m<sup>-3</sup> (20 mm aukščio suspausto filtro bandinys, matavimo laikas 90 000 s, prasiurbto pro filtrą oro tūris 250 000 m<sup>3</sup>).

Radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimo metodika įgalina užregistruoti išlekiančių iš Ignalinos AE radionuklidų, kitų dirbtinių, emanacinių ir kosmogeninių radionuklidų aktyvumo koncentracijas pažemio ore.

Pažemio oro aerozolio dalelių bandiniuose, kuriuose buvo išmatuoti AE pagaminti radionuklidai, buvo papildomai tiriamas radionuklidų išplovimas iš aerozolio dalelių bandinių taikant parengtą metodiką.

## 3.2 Radionuklidų aktyvumo koncentracijos ore pasiskirstymo skaičiavimas

Černobylio avarijos pasekmių vertinimo rezultatai parodė operatyvios meteorologinės ir dozimetrinės informacijos trūkumus ir stimuliavo modeliavimo sistemų, veikiančių realiu laiku, operatyviai gaunamų meteorologinių duomenų pagrindu, su prognozės elementais, plėtrą. Sukurtos pažangios COSYMA, INTERRAS, RIMPUFF ir kitos kompiuterinės programos, kurių pagalba pagal radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore ir iškritose duomenis galima įvertinti radionuklidų jonizuojančiosios spinduliuotės apšvitos dozę. Empirinių turbulentinės difuzijos pažemio ore formulių pagrindu parengti radionuklidų pernašos ribotais atstumais modeliai sėkmingai taikomi radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore ir iškritose pasiskirstymo skaičiavimams avarinių situacijų atvejais.

Darbe radionuklido aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymo skaičiavimams lokaliniu masteliu buvo naudojamas globalinis oro masių pernašos trajektorijų skaičiavimo ir priemaišų pasiskirstymo ore modelis Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT). Meteorologiniai duomenys neribotai prieinami National Oceanica and Atmospheric Administration Air Resources Laboratory tinklapyje [119].

HYSPLIT modelis yra rekomenduotas Visuotinio branduolinių bandymų nutraukimo sutarties organizacijos (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization, CTBTO) ir aprobuotas aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, pernašos su oro masėmis trajektorijoms skaičiuoti [120-124]. Meteorologiniai parametrai pateikiami 6 val. arba 3 val. intervalais, skirtingais izobariniais lygiais. Parametrų erdvinė skyra yra apie 2,5 °.

HYSPLIT modelio meteorologinio archyvo duomenys (vėjo kryptis, atmosferinių kritulių kiekis) buvo palyginti su Ignalinos AE Aplinkos apsaugos laboratorijos meteorologiniais duomenimis, gautais 2005 metais (21 pav.).



21 pav. Vėjo krypties eiga pagal HYSPLIT modelio meteorologinio archyvo ir Ignalinos AE duomenys iškritų bandinio ėmimo laikotarpiu 2005.09.26-11.05. Vertikaliomis linijomis pažymėti pažemio oro aerozolio dalelių bandinių ėmimo laikotarpiai 2005.09.26-10.09, 10.09-15, 10.15-22, 10.22-30, 10.30-11.05.

HYSPLIT modelio meteorologinių duomenų archyvo vėjo krypties, atmosferinių kritulių laikinė eiga patenkinamai koreliuoja su Ignalinos AE meteorologinių parametrų laikine eiga (R = 0,7-0,9, p < 0,0001). Tai leidžia naudoti HYSPLIT modelio meteorologinių duomenų archyvą skaičiuojant radionuklido aktyvumo pasiskirstymą ore lokaliniu masteliu.

Skaičiuojant radionuklidų aktyvumo koncentracijų pažemio ore pasiskirstymus vasaros laiku išlėkų efektyvus aukštis nebuvo vertinamas. Žiemą (gruodis-vasaris) efektyvus išlėkų aukštis yra 200 m. Ignalinos AE regione vidutinis metinis vėjo greitis yra apie 3,5 m/s, o maksimalus vėjo greitis (gūsiai) gali siekti 28 m s<sup>-1</sup> pažemėje.

Modeliavimo rezultatai sulyginami su eksperimentiniais rezultatais. Skirtumai tarp rezultatų iki vienos eilės dydžio laikomi patenkinamais ir paaiškinami neapibrėžtimis, susijusiomis su standartinių vertikalaus ir horizontalaus nuokrypių  $\sigma_y$  ir  $\sigma_z$  verčių nustatymu, išlėkų fakelo atspindžio nuo žemės paviršiaus matavimo taške koeficiento nustatymu, advekciniu fakelo poslinkiu [125], konvekciniais oro srautais nuo aušintuvo [126].

### 3.3 Iškritų bandinių rinkimas

Atominių elektrinių poveikio zonoje paimtuose iškritų bandiniuose yra svarbu registruoti globalios kilmės ir elektrinėje pagamintus radionuklidus. Atominėse elektrinėse pagamintų radionuklidų aktyvumai iškritose yra maži ir tam, kad iškritų bandinyje būtų galima patikimai užregistruoti atominėje elektrinėje pagamintų radionuklidų gama spinduliavimą, didinamas iškritų bandinio paėmimo plotas, tūris ir trukmė.

Ignalinos AE poveikio zonoje, FI stotyje nuo nuolaidaus 10 m<sup>2</sup> paviršiaus kas 1-2 mėnesius renkami lietaus vandens bandiniai. 22 pav. pavaizduota lietaus bandinių ėmimo sistema FI stotyje.



22 pav. Iškritų ėmimo sistema FI stotyje.

Lietaus vanduo nuo nuolaidaus 10 m<sup>2</sup> paviršiaus per drenažo vamzdį surenkamas 1 vonioje. Bandinys filtruojamas per 0,1 mm porų filtrą, kad atskirti iškritų bandinyje esančias stambias daleles.

Žiemos sezono metu paimamas 1-2 m<sup>2</sup> plote susikaupęs sniego (po paskutinio sniego, prieš pirmą lietų) bandinys. Sniego bandinys tirpinamas, nufiltruojamas ir gaunamas analogiškas bandinys, kaip ir vasarą.

Metalų hidroksidai plačiai naudojami radionuklidų koncentravimui aplinkos bandiniuose [127-131]. Ši metodika naudojama nuo pat FI stoties įkūrimo pradžios, daug kartų tikrinta įnešant stabilius nešėjus ir leidžia kritulių vandenyje koncentruoti radionuklidus, buvusius kaip joninėje būsenoje, taip ir aerozolio dalelių sudėtyje [132, 133].

Alikvotinėje 80 l bandinio dalyje, paimtoje iš 2 vonios arba ištirpinto sniego, sąsėdos su Fe<sup>3+</sup>, Mn<sup>2+</sup> ir Co<sup>3+</sup> hidroksidais metodu nusodinamos lietaus vandens priemaišos.

Lietaus arba ištirpinto sniego bandinys parūgštinamas 1 mol  $l^{-1}$  druskos rūgšties tirpalu iki pH (pH  $\approx$  3) ir filtratą pridedama koncentruotų Fe<sup>3+</sup>, Mn<sup>2+</sup> ir Co<sup>3+</sup> druskų tirpalų: 15 ml 1,4 mol l<sup>-1</sup> FeCl<sub>3</sub>, 5 ml 0,8 mol l<sup>-1</sup> MnCl<sub>2</sub> ir 5 ml 0,8 mol l<sup>-1</sup> CoCl<sub>2</sub>. pH vertė tikrinama "Phenanon" universalaus indikatoriaus juostelėmis (Macherey Nagel GmbH & Co. KG). Bandinys kruopščiai išmaišomas. Maišant

filtratą po truputį įlašinama koncentruoto NH<sub>4</sub>OH amoniako tirpalo iki pH  $\approx 9$ . Bandinyje prasideda Fe<sup>3+</sup>, Mn<sup>2+</sup> ir Co<sup>3+</sup>, taip pat atominės elektrinės kilmės <sup>54</sup>Mn<sup>2+</sup> ir <sup>60</sup>Co<sup>3+</sup> hidroksidų susidarymas ir koaguliacija. Bandinyje esantys Mn<sup>2+</sup> ir Co<sup>3+</sup> jonai ir aerozolio dalelės, taip pat <sup>137</sup>Cs junginiai pagaunamos metalų hidroksidų dalelėmis ir kartu su jomis nusėda. Tirpalas paliekamas nusistovėti parai, po to tirpalas nudekantuojamas. Iš likusiu 10 l tirpalo su metalų hidroksidų nuosėdomis su priemaišiniais elementais formuojamas *l bandinys*. Kaip *2 bandinys* papildomai nudekantuojamas, ir 9 l tirpalo prijungiama prie *2 bandinio*. Į bandinius pridedama 8 mol l<sup>-1</sup> koncentruotos azoto rūgšties HNO<sub>3</sub>, kol nuosėdos visiškai ištirpsta. Abudu bandiniai lėtai išgarinami. Garinimo likučiai išdėstomi ant Petrianovo filtrų ir spaudžiamos standartinės geometrijos tabletės. Radionuklidų aktyvumai bandinyje išmatuojami gama spektrometriniu metodu.

<sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn koncentravimo sąsėdos su metalų hidroksidais metodu išeiga buvo nustatyta 2005 metais Vilniaus Universiteto Chemijos fakulteto Bendrosios ir Neorganinės chemijos katedroje (dr. doc. L. Salickaitė Bunikienė) [134]. Periodinės lentelės pereinamųjų metalų <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mn išeigos buvo prilyginamos pagrindinio reagento geležies jonų Fe<sup>3+</sup> išeigai bandinyje. Fe<sup>3+</sup> išeiga, *W*, buvo nustatoma kaip santykis tarp Fe<sup>3+</sup> kiekio *1 bandinyje* ( $C'_{Fe}$ ) ir įpilto į kritulių bandinį pradžioje Fe<sup>3+</sup> kiekio ( $C_{Fe}$ ):

$$W = C'_{Fe} / C_{Fe}, \tag{8}$$

<sup>7</sup>Be ir <sup>137</sup>Cs aktyvumai 80 l bandiniuose,  $A_{80}$  (Bq), buvo įvertinti pagal radionuklidų aktyvumus *l bandinyje* ir *2 bandinyje*.

$$A_{80} = A_1 + 4, I A_2, (9)$$

čia  $A_1$  – radionuklido aktyvumas *1 bandinyje* (Bq),  $A_2$  – radionuklido aktyvumas *2 bandinyje* (Bq). Daugiklis 4,1 naudojamas perskaičiuoti radionuklido aktyvumą alikvotinėje 19 1 tirpalo dalyje (*2 bandinys*) visam lietaus bandinio tūriui 80 1 ir laikoma, kad išmatuoti <sup>7</sup>Be ir <sup>137</sup>Cs aktyvumai *1 ir 2 bandiniuose* 100 % atspindi radionuklidų kiekius 80 l alikvotinėje iškritų bandinio dalyje.

<sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn koncentravimo sąsėdos su metalų hidroksidais metodu išeiga buvo apie 75%, <sup>137</sup>Cs – apie 20%. Radionuklidų koncentravimo sąsėdos su metalų hidroksidais metodu išeigos artimos išeigomis, nustatytomis prieš 10 metų [135].

Lietaus arba ištirpinto sniego bandinio pradiniame apdorojimo etape atskirtos ant filtro stambios dalelės sudaro stambiadispersinę iškritų bandinio frakciją. Dalelės filtrate sudaro smulkiadispersinę iškritų bandinio frakciją. Radionuklidų aktyvumo iškritų bandiniuose matavimo rezultatai leidžia apskaičiuoti radionuklidų srautus iš oro į dirvožemio paviršių ir iškritų dirvožemio paviršiuje tankį atskirai stambiadispersinei ir smulkiadispersinei iškritų bandinio frakcijoms.

Radionuklidų iškritų dirvožemio paviršiuje tankis, Ds (Bq m<sup>-2</sup>), kai buvo renkami bandiniai nuo 10 m<sup>2</sup> nuolaidaus paviršiaus, apskaičiuojamas, remiantis tikslesniais kritulių kiekio I (mm) per bandinio rinkimo laikotarpį meteorologinių stočių duomenimis:

$$D_s = A_s \times (I/V_s), \tag{10}$$

čia  $D_s$  – radionuklido iškritų (smulkiadispersinė frakcija) tankis (Bq m<sup>-2</sup>),  $A_s$  – radionuklido aktyvumas nufiltruotame kritulių bandinyje (Bq), I – kritulių kiekis bandinio ėmimo laikotarpiu (mm), kas atitinka kritulių tūrį į ploto vienetą (l m<sup>-2</sup>),  $V_s$  – lietaus arba sniego vandens tūris (l).

Radionuklido iškritų (stambiadispersinės frakcijos) tankis,  $D_p$  (Bq m<sup>-2</sup>), įvertinamas aktyvumo ir bandinio surinkimo ploto santykiu:

$$D_p = A_p / S, \tag{11}$$

čia  $D_P$  – stambiadispersinės iškritų bandinio frakcijos radionuklidų iškritų dirvožemio paviršiuje tankis (Bq m<sup>-2</sup>),  $A_p$  – radionuklido aktyvumas filtre (Bq), S – nuolaidaus paviršiaus arba sniego bandinio ėmimo plotas (m<sup>2</sup>).

Radionuklido srautas iš oro į dirvožemio paviršių, F (Bq m<sup>-2</sup> mėnuo <sup>-1</sup>), apskaičiuojamas:

$$F = D/t, \tag{12}$$

čia D – smulkiadispersinės ( $D_S$ ) arba stambiadispersinės ( $D_P$ ) iškritų bandinio frakcijos radionuklidų iškritų dirvožemio paviršiuje tankis (Bq m<sup>-2</sup>), t – kritulių bandinio ėmimo laikotarpis, gautas normalizuojant iškritų bandinio ėmimo laikotarpį į vieną mėnesį.

Remiantis radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimo rezultatais ir išmatuotais radionuklidų (stambiadispersinė iškritų bandinio frakcija) iškritų srautais iš oro į dirvožemio paviršių,  $F_p$  (Bq m<sup>-2</sup> mėnuo <sup>-1</sup>), galima apskaičiuoti radionuklidų sauso iškritimo greitį,  $v_g$  (m s<sup>-1</sup>):

$$v_g = \frac{F_p}{\overline{A}_V},\tag{13}$$

čia  $\overline{A}_V$  – radionuklido aktyvumo koncentracijos ore vidutinė vertė kritulių bandinio ėmimo laikotarpiu (Bq m<sup>-3</sup>). Radionuklidų sauso iškritimo greičio vertės buvo naudojamos skaičiuojant radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymus Ignalinos AE regione.

Kaip parodyta aukščiau, darbe naudotos radionuklidų aktyvumo koncentracijų iškritose matavimų metodikos įgalina įvertinti radionuklidų srautą į žemės paviršių.

#### 3.4 Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, išplovimo vandeniu metodika

Išplovimas yra neorganinių ir organinių teršalų bei radionuklidų atpalaidavimas iš kietos į vandens fazę, kurio metu vyksta tirpinimo, desorbcijos ir kompleksų susidarymo procesai, veikiant bandinius skirtingo pH ir cheminės sudėties tirpalais [136]. Vienas populiariausių tirpiklių, naudojamų radionuklidų nešėjų išplovimo eksperimentuose, yra distiliuotas vanduo [137, 138].

Darbe pasirinkome surinktų smulkiapluoštiniais filtrais aerozolio dalelių išplovimą distiliuotu vandeniu. Eksperimento metu buvo išmatuojami radionuklidų aktyvumai šiose bandinio frakcijose: pradiniame *bandinyje*, bandinyje po eksperimento (*likutyje*) ir gautame *tirpale*.

Pažemio oro aerozolio dalelių bandinys (*bandinys*) mechaniškai suardomas ir užpilamas 500 ml distiliuoto vandens. Po 8 val. ekstrakcijos (darbo dienos trukmė) aerozolio dalelių bandinio liekanos su filtro medžiaga presuojamos į tabletę ir nustatomi radionuklidų aktyvumai bandinyje. Radionuklidų aktyvumai tirpale buvo išmatuojami, garinant parūgštintą tirpalą, pagamintuose standartinės geometrijos bandiniuose. Radionuklidų aktyvumai aerozolio dalelių bandinyje po eksperimento (*likutis*) nustatomi gama spektrometriniu metodu tiksliai atkartojamomis bandinio ir detektoriaus išsidėstymo sąlygomis, kas leidžia tiksliau lyginti radionuklidų aktyvumus bandinyje iki eksperimento ir po eksperimento.

Ignalinos AE ventiliaciniame ore surinktų ant filtrų aerozolio dalelių bandinys (*bandinys*) užpilamas 500 ml distiliuoto vandens. Po 8 val. ekstrakcijos bandinys išdžiovinamas kambario temperatūroje.

Gama spektrometriniu metodu išmatuojamas aerozolio dalelių bandinio energetinis gama spektras. 23 pav. parodyti energetinių gama spektrų pavyzdžiai.





23 pav. Foninis energetinis gama spektras (1), *bandinio* energetinis gama spektras (2) ir *likučio* po radionuklidų išplovimo iš aerozolio dalelių bandinio eksperimento energetinis gama spektras (3). Bandinys paimtas Ignalinos AE 2 bloko ventiliacinio kamino ore 2007.06.19-26 d. Spektrų rinkimo laikas 90 000 s.

Kaip matyti iš 23 pav., bandinio energetiniame gama spektre po aerozolio dalelių išplovimo iš aerozolio dalelių bandinio eksperimento (3) registruojama mažiau radionuklidų skleidžiamų gama kvantų nei iki eksperimento (2).

Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, išplovimo metodikos parengimo metu atskirose aerozolio bandinio frakcijose buvo matuojami radionuklidų aktyvumai, kad nustatyti metodinius nuostolius ir įvertinti radionuklidų aktyvumo balansą. 24 pav. pateikiami <sup>137</sup>Cs aktyvumai trijų Ignalinos AE ventiliacinio oro aerozolio dalelių bandinių frakcijose.



24 pav. <sup>137</sup>Cs aktyvumai eksponuotuose filtruose (Bq) (*bandinys*) iki eksperimento, filtruose po eksperimento (*likutis*) ir gautuose tirpaluose (*tirpalas*). Filtrai eksponuoti Ignalinos AE 2 bloko kamino ventiliaciniame ore 2007.06.01-07, 2007.06.07-15, 2007.06.19-26 d. Spektry rinkimo laikas 80 000 -100 000 s.

Rezultatai parodo, kad radionuklido aktyvumų filtre ir tirpale po eksperimento suma paklaidų ribose sutampa su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje. Matuojant radionuklidų aktyvumą pradiniame bandinyje ir likutyje po eksperimento išlaikoma ta pati matavimo geometrija. Matuojant radionuklidų aktyvumą tirpale, buvo naudojamas skirtingos geometrijos bandinys. Radionuklido aktyvumo filtre po eksperimento ir radionuklido aktyvumo filtre iki eksperimento santykis nustatomas tiksliau, tačiau atspindi išplautoje aerozolio dalelių frakcijoje radionuklidų aktyvymo santykį su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje.

Išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklido aktyvumo santykis su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje nustatomas:

$$W = \frac{A_t}{A} = \frac{A - A_{nt}}{A} = 1 - \frac{A_{nt}}{A},\tag{14}$$

čia A – radionuklidų aktyvumas filtre (Bq),  $A_t$  – radionuklidų aktyvumas tirpale (Bq),  $A_{nt}$  – radionuklidų aktyvumas filtre po eksperimento (Bq), W – išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklido aktyvymo santykis su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje.

Radionuklido aktyvumų A ir Ant absoliučios paklaidos  $\delta A$  ir  $\delta Ant$  lygios radionuklido aktyvumo matavimo statistinėms paklaidoms. Santykinė paklaida,  $\delta W/W$ , įvertinta kaip radionuklido aktyvumo bandinyje iki eksperimento,  $\delta A/A$ , ir radionuklido aktyvumo bandinyje po eksperimento,  $\delta Ant/Ant$ , santykinių paklaidų suma. Surinktų aerozoliniais filtrais aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, išplovimo vandeniu procedūra buvo kartojama dar kartą tam, kad būtų įsitikinta, ar tikrai po eksperimento į vandenį patenka visi radionuklidai, kurie galėjo išsiplauti kartu su aerozolio dalelėmis. 25 pav. pateikiami nuosekliai pakartotų aerozolio dalelių bandinių išplovimo eksperimentų rezultatai.



25 pav.  ${}^{60}$ Co,  ${}^{137}$ Cs,  ${}^{54}$ Mn ir  ${}^{134}$ Cs aktyvumai bandinyje (Bq) iki surinktų filtrais aerozolio dalelių bandinių (*bandinys*) išplovimo eksperimento, po eksperimento (*likutis 1*) ir pakartotinio eksperimento (*likutis 2*). Bandinys paimtas Ignalinos AE 2 bloko kamino ventiliaciniame ore 2007.06.26-07.03. Spektro rinkimo laikas 95000 s.

Nuosekliai pakartotų aerozolio dalelių bandinių išplovimo eksperimentų rezultatai dar kartą parodo, kad radionuklidų aktyvumai filtre po eksperimento ir po pakartotinio eksperimento sutampa paklaidų ribose.

Atsižvelgiant į aukščiau išdėstytą, siūloma aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu nustatymo schema (26 pav.):



26 pav. Surinktų filtrais aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, bandinių išplovimo vandeniu nustatymo schema. "Bandinys" – filtrais surinktų aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, bandinys. "Likutis 1" ir "Likutis 2" – filtras po pirmo ir pakartotinio eksperimentų. " $\gamma$ " – radionuklidų aktyvumai bandinyje išmatuojami gama spektrometriniu metodu.

Aerozolio dalelių išplovimo metodikos parengimo metu papildomai buvo ištirti tirpalai, gauti atlikus išplovimo eksperimentus. Tirpalas nufiltruojamas per membraninį stiklo pluošto filtrą. Tirpale esančios, didesnės nei 0,45  $\mu$ m aerozolio dalelės buvo atskiriamos nufiltruojant tirpalą pro stiklo pluošto *GF filtrą* (porų dydis 0,45  $\mu$ m, Whatman Glass Fiber). *Filtratas* buvo parūgštinamas 8 mol 1<sup>-1</sup> azoto rūgšties tirpalu, išgarinamas iki 50 ml ir supilamas į Petri lėkštelę. Radionuklidų

aktyvumai *bandinyje*, *likutyje*, *GF filtre* ir *filtrate* buvo išmatuojami gama spektrometriniu metodu.

27 pav. grafiškai pateikiami radionuklidų aktyvumai atskirose aerozolio dalelių, surinktų filtrais, bandinio frakcijose.



27 pav. <sup>60</sup>Co aktyvumai bandinyje (Bq) iki išplovimo eksperimento (*bandinys*), po eksperimento (*1 plovimas*) ir po pakartotinio eksperimento (*2 plovimas*). Bandinys paimtas Ignalinos AE 2 bloko ventiliacinėje sistemoje 2008.04.23. Pro filtrą prasiurbto ventiliacinio oro tūris 0,4 m<sup>3</sup>. Spektro rinkimo laikas 90 000 s. Punktyrine linija pavaizduota radionuklido aktyvumo bandinyje registravimo riba.

Atlikus aerozolio dalelių *bandinio* išplovimo eksperimentą, dalis aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, lieka ant filtro, kita dalis pereina į tirpalą ir beveik visiškai atskiriama ant membraninio filtro. Radionuklidų aktyvumai *filtrate* buvo žemiau radionuklidų aktyvumo registravimo ribos (10 mBq). Radionuklido aktyvumo išplautame filtre (*likutis*) ir membraniniame filtre (*GF filtras*) suma paklaidų ribose sutampa su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje.

Kaip matyti iš 27 pav., išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklido aktyvumas lygus radionuklidų aktyvumui aerozolio dalelėse, surinktose ant membraninio filtro, ir išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklido aktyvymo santykis su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje (14) nesikeičia.

Atlikus pakartotinį aerozolio dalelių bandinio (*likučio*) išplovimo eksperimentą, radionuklido aktyvumas *likutyje* beveik nesikečia ir sutampa su radionuklido aktyvumu *likutyje* po pirmo išplovimo. Po pakartotinio aerozolio dalelių bandinio (*likučio*) išplovimo eksperimento radionuklidų aktyvumai *filtrate* buvo žemiau jų registravimo ribos.

Rezultatai dar kartą patvirtina, kad radionuklido aktyvumų skirtingose aerozolio bandinio frakcijose suma paklaidų ribose sutampa su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje ir atlikus pakartotinį išplovimo eksperimentą radionuklido aktyvumas nesikeičia paklaidų ribose bei sutampa su radionuklido aktyvumu membraniniame filtre, per kurį buvo nufiltruotas tirpalas.

2009 metais atliktas darbe naudojamos aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodikos rezultatų palyginimas su Tessier pakopinės ekstrakcijos metodika [139] gaunamais rezultatais.

Pakopinės ekstrakcijos metodika, analogiška aprašytai darbe [102], panaudota aerozolio dalelių surinktų ant filtrų Ignalinos AE ventiliaciniame kamine tyrimui. Lygiagrečiai analogiškų bandinių tyrimui naudota mūsų aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodika. Pirmame pakopinės ekstrakcijos metodikos etape ekstrahentu naudojamas distiliuotas vanduo. Šis etapas analogiškas darbe naudojamai aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodikai. Rezultatai rodo, kad aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu rezultatai, taikant darbe pasiūlytą metodiką ir Tessier pakopinės ekstrakcijos metodikos pirmą etapą, sutampa paklaidų ribose (12 lentelė).

12 lentelė. Radionuklidų aktyvumai Ignalinos AE ventiliacinio oro aerozolio dalelių bandiniuose iki aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu eksperimentų ir atskirose bandinio frakcijose po eksperimentų bei 1) radionuklidų aktyvumų santykis membraniniame filtre ir pradiniame bandinyje,  $W_1$ , %, ir 2) radionuklidų aktyvumų santykis likutyje ir pradiniame bandinyje,  $W_2$ , %. a) Tessier pakopinės ekstrakcijos metodikos pirmas etapas, b) darbe naudojama aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodika.

Aarazalia			13/0					611		
Aerozono	erozolio <sup>137</sup> Cs					<sup>60</sup> Co				
bandinio		Aktyvi	umas, mE	Bq			Aktyvumas, mBq			
ėmimo	Α	$A_{nt}$	$A_{memb.}$	$A_{tirp.}$		Α	$A_{nt}$	A <sub>memb.</sub>	$A_{tirp.}$	
laikotarpis	1	2	3	4		1	2	3	4	
essier pakopii	iės eks	trakcijo	os metodi	ka						
					$W_l, \%$					$W_l, \%$
2007.07. 3-5	220	160	50	_	27±5	180	140	30	_	22±5
2007.07. 6-10	190	140	50	_	26±5	130	100	30	_	23±5
arbe pasiūlyta	a aeroz	olio da	lelių banc	linių išpl	ovimo van	deniu n	netodik	a		
					$W_{2}, \%$					$W_{2}, \%$
2007.07. 27-08.31	170	130			24±5	130	100			23±5
200707. 25-31	120	80			31±6	160	130			19±4
	bandinio emimo laikotarpis essier pakopin 2007.07. 3-5 2007.07. 6-10 barbe pasiūlyta 2007.07. 27-08.31 200707. 25-31	bandinio $A$ bandinio $A$ laikotarpis       1         essier pakopinės eks       1         2007.07.       220         2007.07.       190         6-10       190         varbe pasiūlyta aeroz       1         2007.07.       190         2007.07.       170         2007.07.       120         2007.07.       120	bandinio       Aktyvi         èmimo $A$ $A_{nt}$ laikotarpis       1       2         essier pakopinės ekstrakcijo         2007.07.       220         3-5       220         2007.07.       190         6-10       190         varbe pasiūlyta aerozolio da         2007.07.       170         2.007.07.       130         2007.07.       120         80	bandinio       Aktyvumas, mE         èmimo $A$ $A_{nt}$ $A_{memb.}$ laikotarpis       1       2       3         essier pakopinės ekstrakcijos metodi         2007.07.       220       160       50         2007.07.       190       140       50         arbe pasiūlyta aerozolio dalelių banc         2007.07.       170       130         2007.07.       120       80	Aktyvumas, mBq         bandinio       Aktyvumas, mBq         akikotarpis       A $A_{nt}$ A_{memb.}       A_{tirp.}         laikotarpis       1       2       3       4         essier pakopinės ekstrakcijos metodika       2007.07.       220       160       50       -         2007.07.       220       160       50       -       -         2007.07.       190       140       50       -         arbe pasiūlyta aerozolio dalelių bandinių išplo       2007.07.       170       130         200707.       120       80       25-31       120       80	Aktyvumas, mBq         bandinio       Aktyvumas, mBq $A_{nt}$ $A_{memb.}$ $A_{tirp.}$ laikotarpis       1       2       3       4         essier pakopinės ekstrakcijos metodika $W_1, \%$ 2007.07.       220       160       50       –       27±5         2007.07.       190       140       50       –       26±5         arbe pasiūlyta aerozolio dalelių bandinių išplovimo van $W_2, \%$ 2007.07.       170       130       24±5         200707.       120       80       31±6	Aktyvumas, mBq $A$ èmimo $A$ $A_{nt}$ $A_{memb.}$ $A_{tirp.}$ $A$ laikotarpis       1       2       3       4       1         essier pakopinės ekstrakcijos metodika $W_1$ , % $M_1$ , % $W_1$ , %         2007.07.       220       160       50 $ 27\pm5$ 180         2007.07.       190       140       50 $ 26\pm5$ 130         arbe pasiūlyta aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu r $W_2$ , % $W_2$ , %         2007.07.       170       130 $24\pm5$ 130         2007.07.       120       80 $31\pm6$ 160	Aktyvumas, mBq       Aktyvu         èmimo $A$ $A_{nt}$ $A_{memb.}$ $A_{tirp.}$ $A$ $A_{nt}$ laikotarpis       1       2       3       4       1       2         essier pakopinės ekstrakcijos metodika $W_1, \%$ $W_1, \%$ $W_1, \%$ 2007.07.       220       160       50 $ 27\pm5$ 180       140         2007.07.       190       140       50 $ 26\pm5$ 130       100         arbe pasiūlyta aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodik $W_2, \%$ $W_2, \%$ $W_2, \%$ 2007.07.       170       130 $24\pm5$ 130       100         2007.07.       200707.       120       80 $31\pm6$ 160       130	Aktyvumas, mBq       Aktyvumas, mBq $A$ $A_{nt}$ $A_{memb.}$ $A_{tirp.}$ laikotarpis       1       2       3       4 $1$ 2       3         essier pakopinės ekstrakcijos metodika $W_1$ , %       1       2       3         2007.07.       220       160       50       -       27±5       180       140       30         2007.07.       190       140       50       -       26±5       130       100       30         arbe pasiūlyta aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodika $W_2$ , % $W_2$ , % $W_2$ , %         2007.07.       170       130       24±5       130       100         2007.07.       200707.       120       80       31±6       160       130	Aktyvumas, mBq       Aktyvumas, mBq $A$ $A_{nt}$ $A_{memb.}$ $A_{tirp.}$ laikotarpis       1       2       3       4         essier pakopinės ekstrakcijos metodika $M_{I}$ , %       1       2       3       4         2007.07.       220       160       50       - $27\pm5$ 180       140       30       -         2007.07.       220       160       50       - $27\pm5$ 180       140       30       -         2007.07.       190       140       50       - $26\pm5$ 130       100       30       -         arbe pasiūlyta aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodika $W_2$ , % $W_2$ , % $W_2$ , % $W_2$ , %       100       100       2007.07.       120       80 $31\pm6$ 160       130

"–" – radionuklido aktyvumas bandinyje žemiau registravimo ribos

Po pakopinės ekstrakcijos metodikos pirmo etapo likusiuose aerozoliniuose filtruose papildomai buvo atliktas aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu nustatymas pagal pakopinės ekstrakcijos metodikos antrą (ekstrahentas 1 M MgCl<sub>2</sub> tirpalas) ir trečią etapus (ekstrahentas 1 M NH<sub>4</sub>Cl tirpalas). Rezultatai verti dėmesio, tačiau bandinių surinktų AE ventiliacinėje sistemoje, kur, kaip medžiaga aerozolių gamybai, dominuoja persotinti vandens garai, tyrimo duomenų interpretacijai mažai informatyvūs.

# 3.4.1 Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, bandinių išplovimo vandeniu eksperimentams atlikti paėmimas

Aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, bandinių išplovimo vandeniu eksperimentams buvo paimti aerozolio dalelių bandiniai sistemos "Ignalinos AE – aplinka" vietose, kur aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, savybės, kaip seka iš literatūros apžvalgos, buvo skirtingos.

Darbe atlikti aerozolio dalelių bandinių, surinktų pažemio ore FI stotyje Ignalinos AE regione 2004-2005 metais, Ignalinos AE reaktorių ventiliacinių kaminų ore 2006-2007 metais ir papildomai IAE ventiliacinių sistemų ore 2008 metais, išplovimo vandeniu eksperimentai.

Pažemio oro aerozolio dalelių bandinių paėmimas aprašytas aukščiau metodikos skyriuje (žr. 43 psl.). Ignalinos AE reaktorių ventiliacinių kaminų ore aerozolio dalelių bandiniai paimti ant aerozolinių AFA filtrų (M. ir T. Litvinovai, IAE Radiacinės saugos laboratorija) (28 pav.).



28 pav. AFA filtro pavyzdys.

Ignalinos AE reaktorių ventiliacinių kaminų ore aerozolio dalelių bandiniai buvo imami kasdien arba kas tris dienas (savaitgaliais) automatiniais izokinetiniais ėmikliais įrengtais 90 m aukštyje ventiliacinio kamino vamzdyje. Oro debitas 1 ir 2 blokų ventiliaciniuose kaminuose buvo  $(1,5-1,6)\times10^6$  m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> ir  $(2,5-2,6)\times10^6$  m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> 2007 metais, atitinkamai. Ventiliacinio oro debitas pro bandinių ėmimo sistemą buvo 60 dm<sup>3</sup> min<sup>-1</sup>. Aerozolio dalelių bandinių išplovimo tyrimams buvo atrenkami nuosekliai paimti bandiniai, atspindintys savaitės oro siurbimą pro filtrus. Radionuklidų aktyvumo koncentracijų išlėkose pro ventiliacinį kaminą registravimo riba gama spektrometriniu metodu yra 10 µBq m<sup>-3</sup> (bandinio matavimo laikas 90 000 s, pro filtrą prasiurbto oro tūris 600 m<sup>3</sup>). Tipinė <sup>137</sup>Cs aktyvumo nustatymo bandinyje statistinė matavimo paklaida yra 10-20 %, <sup>134</sup>Cs ir <sup>54</sup>Mn aktyvumo nustatymo bandinyje statistinė matavimo paklaida yra 20-30 % (1  $\sigma$  pasikliautinasis lygmuo).

Ignalinos AE 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos ore buvo papildomai paimti aerozolio dalelių bandiniai 2008.04.22-24. Bandiniai buvo imami skirtingose Ignalinos AE reaktoriaus ventiliacinės sistemos dalyse: iki išlaikymo kameros (TS30R01) ir po išlaikymo kameros (TP21R01), iki anglies adsorberių (TS60R01) ir

po anglies adsorberių (TS60R02). Bandinių paėmimo Ignalinos AE reaktorių ventiliacinės sistemoje vietų išsidėstymas parodytas 29 pav.



29 pav. Ignalinos AE 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos oro aerozolio dalelių bandinių ėmimo vietos.

Ventiliacinio oro debitas aerozolio dalelių bandinių ėmimo metu buvo 10 l/min. Pro kiekvieną filtrą buvo prasiurbta 400 l ventiliacinio oro. 13 lentelėje pateikiamos Ignalinos AE 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos ore paimtų aerozolio dalelių bandinių charakteristikos.

13 lentelė. Ignalinos AE 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos ore 2008.04.23 paimtų aerozolio dalelių bandinių charakteristikos.

Bandinio ėmimo vietos žymėjimas, pavadinimas ir patalpa	Bandinio ėmimo laikas
2TS30R01	2008.04.23
Prieš išlaikymo kamerą // 101/2, 010B2	08:28-09:08
2TS21R01	2008.04.23
Po išlaikymo kameros // 101/2, 010B2	08:35-09:15
2TS60R01	2008.04.23
Prieš anglies adsorberius // 101/2, 505B2	08:43-09:23
2TS60R02	2008.04.23
Po anglies adsorberių // 101/2, 519B2	09:25-10:00

30 pav. pavaizduota Ignalinos AE ventiliacinės sistemos oro aerozolio dalelių bandinių ėmimo sistema (A) ir radionuklidų aktyvumo paimtuose aerozolio dalelių bandiniuose matavimo sistema (B).



30 pav. Ignalinos AE ventiliacinės sistemos oro aerozolio dalelių bandinių ėmimo sistema (A) ir radionuklidų aktyvumo paimtuose aerozolio dalelių bandiniuose matavimo sistema (B).

Gama kvantų registravimo efektyvumas AFA filtro geometrijoje buvo įvertintas pagaminus kalibravimo šaltinį. Žinomo aktyvumo <sup>137</sup>Cs ir <sup>152</sup>Eu epoksidinės dervos plokštelės buvo priklijuotos ant kartoninio disko (31 pav.).



31 pav. Kalibravimo šaltinis gama kvantų registravimo efektyvumui AFA filtro geometrijoje nustatymui.

32 pav. pateikiami gama kvantų registravimo efektyvumai AFA filtro geometrijai ir Petri lėkštelės geometrijai. Petri lėkštelė buvo naudojama matuojant radionuklidų aktyvumus tirpaluose.



32 pav. Gama kvantų registravimo efektyvumai AFA filtro geometrijai (skersmuo  $D = 50 \text{ mm}, \rho \approx 0.9 \text{ g cm}^{-3}$ ) ir Petri lėkštelės geometrijai (plastikas, skersmuo  $D = 85 \text{ mm}, \rho \approx 0.9 \text{ g cm}^{-3}$ , užpildymo skysčiu tūris 50 cm<sup>3</sup>).

Skirtingose sistemos "Ignalinos AE – aplinka" vietose ant filtrų surinktų aerozolio dalelių, radionuklidų nešėjų, savybės buvo tiriamos taikant aukščiau aprašytą aerozolio dalelių bandinių išplovimo vandeniu metodiką.

#### REZULTATAI

Eksperimentiniai darbo rezultatai yra radionuklidų aktyvumo koncentracijos pažemio ore bei iškritose regione ir radionuklidų aktyvumo koncentracijos Ignalinos AE ventiliacinės sistemos ore. Gauti aerozolio dalelių, surinktų ant filtrų, išplovimo rezultatai.

# 4.1 Radionuklidų aktyvumo koncentracijos pažemio ore Ignalinos AE aplinkoje

Ilgalaikiai ir nuolatiniai radionuklidų koncentracijų ore ir iškritose matavimų atominių elektrinių aplinkoje rezultatai padeda vertinti dirbtinių ilgaamžių radionuklidų šaltinių indėlį radionuklidų balansui atmosferoje ir prognozuoti galimų avarijų atominėse elektrinėse padarinių pasekmes. Nuo 1978 metų Ignalinos AE poveikio zonoje Fizikos instituto geofizinėje stotyje nepertraukiamai vykdomi radionuklidų aktyvumo koncentracijų matavimai pažemio ore ir iškritose. Radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimo metodika su 0,1 µBq/m<sup>3</sup> jautrumu įgalina išmatuoti išlekiančių iš Ignalinos AE radionuklidų, kitų dirbtinių, emanacinių ir kosmogeninių radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimai buvo tęsiami nuo 2004.10.15 iki 2009.01.02 (doktorantūros studijų metais).

Globaliai pasiskirsčiusio <sup>137</sup>Cs ir kosmogeninio <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų pažemio ore Ignalinos AE regione reikšmės pateiktos grafiškai 33 pav.



33 pav. <sup>7</sup>Be ir <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio ore Ignalinos AE regione 2004.10.15-2009.01.02.

<sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai stebimi pavasarį. Šie padidėjimai ryškūs 2005 ir 2006 metais. 2008 metais registruotas <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų ore padidėjimas rudenį. Tikriausiai, tai galima paaiškinti atmosferos cirkuliacijos pobūdžio kitimu 2007-2008 metais.

 $^{137}$ Cs gama spinduliavimas buvo registruotas beveik visuose pažemio oro aerozolio dalelių bandiniuose, nors dalyje bandinių  $^{137}$ Cs aktyvumai buvo žemiau registravimo ribos (0,1 µBq/m<sup>3</sup>). Dauguma  $^{137}$ Cs aktyvumo koncentracijos ore verčių svyravo intervale nuo mažiausiai registruojamos aktyvumo koncentracijos ore iki 4,0 µBq/m<sup>3</sup>. Stebėti du ryškūs  $^{137}$ Cs aktyvumo koncentracijų ore maksimumai sausiovasario mėnesiais ir rugsėjo-spalio mėnesiais (33 pav.).

Kasmet registruojami šuoliški <sup>137</sup>Cs koncentracijų ore padidėjimai, kurie nesutampa su Ignalinos AE pasigaminančių <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn aktyvumo koncentracijos pažemio ore registravimo atvejais (14 lentelė). Lentelėje pateiktos aerozolio filtrų keitimo datos žymi vieno pažemio oro aerozolio dalelių bandinio ekspozicijos pabaigą ir kito pradžią.

Nr		Bandinio émimo	Radionuklido aktyvumo koncentracija ore,					
Nr.	latalaga			μΒα	ı∕m³			
kataloge	laikotaipis	<sup>7</sup> Be	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>54</sup> Mn			
1	2	3	4	5	6	7		
1	2933	2004.10.15 - 24	3840	3,9	< 0,1	< 0,1		
2	2934	2004.10.24 - 31	960	< 0,1	6,4	< 0,1		
3	2935	2004.10.31 - 11.07	1470	2,4	1,8	< 0,1		
4	2936	2004.11.07 - 11	1330	1,5	1,7	0,9		
5	2937	2004.11.11 - 20	1160	0,9	< 0,1	< 0,1		
6	2938	2004.11.20 - 27	2250	1,7	< 0,1	< 0,1		
7	2939	2004.11.27 - 12.04	2195	2,2	0,7	< 0,1		
8	2940	2004.12.04 - 11	1650	1,0	0,7	< 0,1		
9	2941	2004.12.11 - 18	3740	1,7	0,8	< 0,1		
10	2942	2004.12.18 - 25	2300	1,6	< 0,1	< 0,1		
11	2943	2004.12.25 - 2005.01.02	1950	2,4	0,4	< 0,1		
12	2944	2005.01.02 - 08	2120	1,4	2,0	< 0,1		
13	2945	2005.01.08 -16	3290	1,6	1,1	< 0,1		
14	2946	2005.01.16 - 22	3465	4,1	< 0,1	< 0,1		
15	2947	2005.01.22 - 29	1590	2,0	0,5	< 0,1		
16	2948	2005.01.29 - 02.05	3940	4,5	0,7	< 0,1		
17	2949	2005.02.05 - 19	4000	6,9	0,4	0,2		
18	2950	2005.02.19 - 03.05	7370	3,6	2,2	< 0,1		

14 lentelė. <sup>7</sup>Be, <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn aktyvumo koncentracijos pažemio ore Ignalinos AE regione 2004.10.15-2009.01.02.
1	2	3	4	5	6	7
19	2951	2005.03.13 - 19	3140	2,0	0,6	< 0,1
20	2952	2005.03.19 - 04.02	4145	1,3	< 0,1	< 0,1
21	2953	2005.04.02 - 09	9010	3,1	< 0,1	< 0,1
22	2954	2005.04.09 - 16	6775	2,2	0,4	< 0,1
23	2955	2005.04.16 - 21	6430	2,2	0,8	< 0,1
24	2956	2005.04.21 - 05.01	8890	1,4	1,7	1,1
25	2957	2005.05.01 - 08	3670	1,9	1,1	< 0,1
26	2958	2005.05.08 - 15	3040	1,0	< 0,1	< 0,1
27	2959	2005.05.15 - 22	4650	1,8	0,7	< 0,1
28	2960	2005.05.22 - 05.27	4680	1,8	0,8	< 0,1
29	2961	2005.05.27 - 06.05	5710	1,.3	< 0,1	< 0,1
30	2962	2005.06.05 - 06.20	1310	< 0,1	< 0,1	< 0,1
31	2963	2005.06.20 - 06.27	4260	< 0,1	< 0,1	< 0,1
32	2964	2005.06.27 - 07.04	2020	< 0,1	< 0,1	< 0,1
33	2965	2005.07.04 - 15	2835	< 0,1	< 0,1	< 0,1
34	2966	2005.07.15 - 24	860	< 0,1	< 0,1	0,1
35	2967	2005.07.24 - 31	730	< 0,1	< 0,1	< 0,1
36	2968	2005.07.31 - 08.11	2220	< 0,1	< 0,1	< 0,1
37	2969	2005.08.11 - 18	380	< 0,1	< 0,1	< 0,1
38	2970	2005.08.18 - 09.11	3600	0,7	< 0,1	< 0,1
39	2971	2005.09.11 - 18	1790	0,7	< 0,1	< 0,1
40	2972	2005.09.18 - 26	1510	1,2	< 0,1	< 0,1
41	2973	2005.09.26 - 10.02	5170	5,1	< 0,1	< 0,1
42	2974	2005.10.02 - 09	4050	4,4	0,9	0,6
43	2975	2005.10.09 - 15	5030	6,8	0,8	< 0,1
44	2976	2005.10.15 - 22	3080	2,5	< 0,1	< 0,1
45	2977	2005.10.22 - 30	2/60	0,2	< 0,1	< 0,1
40	2978	2005.10.30 - 11.05	8200	1/,4	< 0,1	< 0,1
4/	2979	2005.11.05 - 12	1230	2,0	< 0,1	< 0,1
48	2980	2005.11.12 - 20	2620	1,3	<u> </u>	< 0,1
<u> </u>	2981	2005.11.20 - 20	1420	1,7	1,5	< 0,1
51	2982	2005.12.04 - 10	1420	2,3	< 0,1	< 0,1
$\frac{51}{52}$	2983h	2005.12.04 - 10	1850	1,4	< 0,1	< 0.1
53	2984	2005.12.10 10	890	1,5	< 0.1	< 0.1
54	2985	2005.12.10 27	850	2 4	0.5	< 0.1
	2705	2005.12.31 -	050	2,1	0,5	•0,1
55	2986	2006.01.07	1130	8,9	< 0,1	< 0,1
56	2987	2006.01.07 - 14	3790	< 0,1	< 0,1	< 0,1
57	2989	2006.01.21 - 28	5930	2,6	< 0,1	< 0,1
58	2990	2006.01.28 - 02.04	3430	1,7	< 0,1	< 0,1
59	2991	2006.02.04 - 12	5500	5,1	< 0,1	< 0,1
60	2992	2006.02.12 - 18	1970	4,1	< 0,1	< 0,1
61	2993	2006.02.18 - 25	390	1,5	< 0,1	< 0,1
62	2994	2006.02.25 - 03.04	770	1,0	< 0,1	< 0,1
63	2995	2006.03.04 - 12	790	1,2	0,3	< 0,1

1	2	3	4	5	6	7
64	2996	2006.03.12 - 18	1070	0,8	0,5	< 0,1
65	2997	2006.03.18 - 04.01	750	0,7	< 0,1	< 0,1
66	2998	2006.04.01 - 08	600	0,7	< 0,1	< 0,1
67	2999	2006.04.08 - 15	730	0,6	< 0,1	0,5
68	3000	2006.04.15 - 23	13500	10,0	< 0,1	< 0,1
69	3001	2006.04.23 - 29	920	1,1	0,5	< 0,1
70	3002	2006.04.29 - 05.06	560	0,4	1,4	< 0,1
71	3003	2006.05.06 - 13	2900	1,4	< 0,1	< 0,1
72	3004	2006.05.13 - 18	4070	0,3	< 0,1	< 0,1
73	3005	2006.05.18 - 27	1680	1,8	< 0,1	< 0,1
74	3006	2006.05.27 - 06.03	2560	1,5	< 0,1	< 0,1
75	3007	2006.06.03 - 10	4040	1,3	< 0,1	< 0,1
76	3008	2006.06.10 - 21	3820	1,0	< 0,1	< 0,1
77	3009	2006.06.21 - 07.03	6070	1,5	0,5	0,3
78	3010	2006.07.03 - 11	9350	1,4	0,2	< 0,1
79	3011	2006.07.11 - 19	1670	0,6	< 0,1	< 0,1
80	3012	2006.07.19 - 29	8280	3,8	0,7	< 0,1
81	3013	2006.07.29 - 08.14	6430	1,9	< 0,1	< 0,1
82	3014	2006.08.14 - 21	5020	1,2	< 0,1	< 0,1
83	3015	2006.08.21 - 09 01	3630	1,4	0,9	1,0
84	3016	2006.09.01 - 09	3530	1,1	< 0,1	< 0,1
85	3017	2006.09.09 - 17	5631	1,8	< 0,1	< 0,1
86	3018	2006.09.17 - 25	5870	2,1	< 0,1	< 0,1
87	3019	2006.09.25 - 30	6570	4,4	< 0,1	< 0,1
88	3020	2006.09.30 - 10.08	4970	1,3	< 0,1	< 0,1
89	3021	2006.10.08 - 10.15	3820	2,6	< 0,1	< 0,1
90	3022	2006.10.15 - 21	5660	2,1	0,3	< 0,1
91	3023	2006.10.21 - 28	4280	2,8	0,1	< 0,1
92	3024	2006.10.28 - 11.12	3410	0,9	0,3	0,3
93	3025	2006.11.12 - 18	1530	0,9	0,3	< 0,1
94	3020	2006.11.18 - 25	2240	/,/	< 0,1	< 0,1
95	3027	2006.11.23 - 12.02	1850	1,/	0,5	< 0,1
90	3028	2000.12.02 - 08	1030	1,2	0,4	<u> </u>
- 97	3029	2000.12.08 - 10	2660	1,5	0,2	0,2
98	2021	2000.12.10 - 30	1420	1,0	< 0,1	< 0,1
100	3031	2000.12.30 - 01.00	2580	0,3	< 0,1	< 0,1
$\frac{100}{101}$	3032	2007.01.00 - 14	2380	1,5	< 0,1 0 3	< 0,1
$\frac{101}{102}$	3033	2007.01.14 - 27	3450	$\frac{0,8}{2.8}$	0,5 < 0.1	< 0,1
$\frac{102}{103}$	3034	2007.01.27 - 02.04	3800	2,0	< 0,1 0.7	< 0,1
103	3035	2007.02.04 - 11	3740	1.0	< 0.1	03
104	3037	2007.02.11 - 10	870	0.9	< 0.1	< 0.1
105	3038	2007.02.10 - 23	900	1.0	< 0.1	< 0.1
107	30394	2007.03.10 - 17	3450	1.0	< 0.1	< 0.1
108	3039R	2007.03.17 - 24	2630	2.2	< 0.1	< 0.1
109	3040	2007.03.24 - 31	2900	1 1	< 0.1	< 0.1
107	2010	2007.05.21 51	2,00	1,1	· 0,1	,1

$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0,1 < 0,1 < 0,1
<u>111 3042 2007.04.09 - 15 3140 1,2 &lt; 0,1</u>	< 0,1
	< 0.1
112 3043 2007.04.15 - 22 510 0,6 0,1	< 0,1
113 3044 2007.04.22 - 30 3440 1,2 0,8	< 0,1
114         3045         2007.04.30 - 05 13         2190         0,7         0,2	0,3
115 3046 2007.05.13 - 23 3240 0,7 0,2	< 0,1
116 3047 2007.05.23 - 06.06 4300 1,2 < 0,1	< 0,1
<u>117 3048 2007.06.06 - 18 3830 1,6 0,5</u>	< 0,1
<u>118</u> 3049 2007.06.18 - 28 3110 0,7 < 0,1	< 0,1
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0,1
120  3051  2007.07.07 - 17  1210  <0,1  <0,1	< 0,1
<u>121 3052 2007.07.17 - 27 1080 0,5 &lt; 0,1</u>	< 0,1
122  3053  2007.07.27 - 08.05  1880  <0,1  <0,1	< 0,1
<u>123 3054 2007.08.05 - 12 930 0,7 &lt; 0,1</u>	< 0,1
<u>124 3055 2007.08.12 - 24 1450 0,.7 &lt; 0,1</u>	< 0,1
125  3057  2007.09.09 - 19  370  0,4  < 0,1	< 0,1
<u>126 3058 2007.09.19 - 27 790 1,0 &lt; 0,1</u>	< 0,1
127  3059  2007.09.27 - 10.06  715  0.8  < 0.1	< 0,1
128  3060  2007.10.06 - 14  250  0.95  <0.1	< 0,1
$129  3060  2007.10 \ 06 - 14  250  0.95  <0.1$	< 0,1
130  3061  2007.10.14 - 20  3880  0.8  < 0.1	< 0,1
<u>131 3062 2007.10.20 - 30 2500 1,7 &lt; 0,1</u>	0,3
132  3063  2007.10.30 - 11.11  1030  1,4  <0,1	< 0,1
<u>133 3064 2007.11.11 - 17 890 0,8 0,5</u>	0,3
134  3065  2007.11.17 - 24  1250  1,2  <0,1	< 0,1
$135  3066  2007.11.24 - 12\ 01  1115  0.8  < 0.1$	< 0,1
136  3067  2007.12.01 - 08  2400  6,1  <0,1	< 0,1
137  3068  2007.12.08 - 16  530  0,7  <0,1	< 0,1
<u>138 3069 2007.12.16 - 23 1850 1,1 &lt; 0,1</u>	< 0,1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0,1
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0,1
141 3072 2008 01 13 - 19 1550 1.6 0.5	< 0.1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0.1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0.1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0.1
145 3076 2008.02.16 - 23 860 0.5 < 0.1	< 0.1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0.1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0.1
<u>148 3079 2008.03.09 - 19 1120 1.0 0.3</u>	< 0.1
<u>149 3080 2008.03.19 - 28 1680 0.95 &lt; 0.1</u>	0,3
<u>150 3081 2008.03.28 - 04.06 3530 1.2 &lt; 0.1</u>	< 0.1
<u>151 3082 2008.04.06 - 13 1190 1.3 &lt; 0 1</u>	< 0.1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0.1
<u>153 3084 2008.04.21 - 05.01 2610 0.7 0.3</u>	< 0.1
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	< 0,1

1	2	3	4	5	6	7
155	3086	2008.05.10 - 17	1500	0,4	< 0,1	< 0,1
156	3087	2008.05.17 - 23	1660	0,45	0,4	< 0,1
157	3088	2008.05.23 - 30	3080	0,7	0,4	< 0,1
158	3089	2008.05.30 - 06.06	1855	0,6	< 0,1	< 0,1
159	3090	2008.06.06 - 15	1610	0,7	< 0,1	< 0,1
160	3091	2008.06.15 - 21	420	< 0,1	< 0,1	< 0,1
161	3092	2008.06.21 - 29	1070	0,3	< 0,1	< 0,1
162	3093	2008.06.29 - 07.05	1560	0,6	0,3	< 0,1
163	3094	2008.07.05 - 12	1065	0,3	< 0,1	< 0,1
164	3095	2008.07.12 - 22	790	< 0,1	< 0,1	< 0,1
165	3096	2008.09.05 - 13	3575	1,0	< 0,1	< 0,1
166	3097	2008.09.13 - 24	4420	1,3	< 0,1	< 0,1
167	3098	2008.09.24 - 30	2620	0,7	< 0,1	< 0,1
168	3099A	2008.09.30 - 10 09	3130	0,55	0,5	< 0,1
169	3099B	2008.10.09 - 18	2740	0,7	< 0,1	< 0,1
170	3100	2008.10.18 - 25	1860	< 0,1	< 0,1	< 0,1
171	3101	2008.10.25 - 11.02	4550	2,3	< 0,1	< 0,1
172	3102	2008.11.02 - 08	2660	1,8	0,5	< 0,1
173	3103	2008.11.08 - 15	3590	2,6	0,6	< 0,1
174	3104	2008.11.15 - 22	1370	0,8	< 0,1	< 0,1
175	3105	2008.11.22 - 26	1860	2,7	<0,1	< 0,1
176	3106	2008.11.26 - 12.02	1270	1,0	<0,1	< 0,1
177	3107	2008.12.02 - 13	2100	1,7	<0,1	< 0,1
178	3108	2008.12.13 - 20	3440	3,3	<0,1	< 0,1
179	3109	2008.12.20 - 26	920	1,2	0,6	< 0,1
180	3110	2008.12.26 - 2009.01.02	2855	1,0	<0,1	< 0,1

2005-2008 metais Ignalinos AE pagaminto <sup>60</sup>Co gama spinduliavimas registruotas 50, o <sup>54</sup>Mn – 14 bandiniuose. Laikome, kad <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn patenka į FI stotyje surinktus filtrus, kai bandinio ėmimo laikotarpiu stotis atsiduria pavėjinėje atominės elektrinės pusėje. Didžiausia <sup>60</sup>Co koncentracija ore buvo užregistruota 2005.02.19-03.05 (2,2  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>), <sup>54</sup>Mn – 2005.04.21-05.01 (1,1  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>). Pastaraisiais metais stebima <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn aktyvumo koncentracijų ore mažėjimo tendencija. Tikriausiai, tai susiję su Ignalinos AE 1 bloko reaktoriaus sustabdymu 2005 metais.

Atskiros radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore reikšmės per ilgesnį laikotarpį svyruoja dėl įvairių faktorių, daugelio iš kurių poveikį sunku įvertinti, ir gali būti vertinamos kaip atsitiktiniai dydžiai. Ilgamečių radionuklidų aktyvumo koncentracijų matavimų rezultatų vertinimą tikslinga atlikti, aprašant radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymus. Radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore kitimo diapazonas dalinamas į lygius intervalus ir suskaičiuojamas į kiekvieną iš intervalų patenkantis metų bėgyje matuotų radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore skaičius. Normuojant į bendrą rezultatų skaičių gaunamas radionuklido aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymo intervaluose tikimybių tankio pasiskirstymas. Dažniausiai gaunamas asimetrinis pasiskirstymas, kuris gali būti aprašomas logaritminiu normaliuoju dėsniu:

$$f(x) = \frac{A}{x\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(\ln x - x_c)^2}{2\sigma^2}\right],$$
(15)

Kai radionuklido aktyvumo koncentracija ore yra artima minimaliam išmatuojamam dydžiui (tokios yra <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore) ir dalyje bandinių jo gama spinduliavimas neregistruojamas, naudojame nupjautinį normalųjį pasiskirstymą:

$$f(x) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(x-x_c)^2}{\sigma^2}\right],$$
(16)

čia f(x) – radionuklido aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymo intervaluose tankis,  $x_c$  ir  $\sigma$  –pasiskirstymo parametrai ( $\sigma$  – radionuklido aktyvumo koncentracijų ore standartinis nuokrypis), A – koeficientas, parenkamas iš normavimo sąlygų.

<sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymo aprašymui normalusis pasiskirstymas tinka geriau, nes aplinkoje yra daug skirtingų radionuklidų šaltinių.

Labiausiai tikėtina radionuklido aktyvumo koncentracijos ore reikšmė  $X_C$ :

$$Xc = \exp(x_c - \sigma^2), \tag{17}$$

Kosmogeninio <sup>7</sup>Be gama spinduliavimas buvo registruotas visuose pažemio oro aerozolio dalelių bandiniuose. <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijos ore svyravo intervale 250-4000  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>. Didžiausia <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracija ore buvo užregistruota 2006.04.15-23 (13500  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>). <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų pasiskirstymų

skaičiavimas realizuotas Origin programinio paketo aplinkoje. Programa paskirsto sąrašu pateikiamas radionuklido koncentracijų ore reikšmes į parinktus intervalus, suskaičiuoja maksimaliai artimai atitinkančią taškus lognormaliojo pasiskirstymo kreivę ir įvertina radionuklido aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymo tankio parametrus. <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų ore 2005-2008 metais pasiskirstymas ir pasiskirstymo aproksimacija logaritminiu normaliuoju dėsniu pateikti 34 pav.



34 pav. <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų ore Ignalinos AE regione pasiskirstymas 2005-2008 metais (taškai), aproksimuotas logaritminiu normaliuoju dėsniu. *Xc* – labiausiai tikėtina <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijos ore reikšmė ( $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>),  $\sigma$  – pasiskirstymo parametras (radionuklido aktyvumo koncentracijų ore standartinis nuokrypis) ( $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>).

Labiausiai tikėtina <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijos reikšmė ore 2005-2008 metais gauta  $1290 \pm 190 \mu Bq/m^3$ . Kosmogeninio <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų vertes ir pasiskirstymą laiko bėgyje vidutinėse platumose lemia tropopauzės aukščio svyravimai, aerozolio dalelių, <sup>7</sup>Be nešėjų, išplovimas krituliais, Saulės aktyvumo

kaita ir atmosferos cirkuliacijos ypatumai. Vidutinė <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracija pažemio ore, tikriausiai, atspindi minėtų faktorių poveikį, tačiau priežastiniai ryšiai čia dar neaiškūs. Gautus rezultatus galime palyginti su <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų ore matavimo rezultatais, gautais beveik prieš tris dešimtmečius. Labiausiai tikėtina <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijos reikšmė ore 1978-1983 metais buvo 1620 ± 420  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> [14]. Kaip matyti, labiausiai tikėtina <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijos reikšmė ore prieš tris dešimtmečius buvo didesnė nei 2005-2008 metais. Šis skirtumas yra statistiškai reikšmingas ir gali būti sąlygotas antropogeninio poveikio klimatui.

<sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore pasiskirstymai atskirais 2005-2008 metais buvo aprašyti nupjautiniu normaliuoju dėsniu, nes kasmet stebime atvejus, kai radionuklido aktyvumo koncentracija ore buvo žemiau registravimo ribos. Origin programos aplinkoje gauti per metus išmatuotų koncentracijų pasiskirstymai ir vidutinių (aritmetinių ir labiausiai tikėtinų) metinių aktyvumo koncentracijų reikšmės pateikti 35 pav.







35 pav. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore Ignalinos AE regione pasiskirstymas 2005-2008 metais (taškai), aproksimuotas nupjautiniu normaliuoju dėsniu. Xc – labiausiai tikėtina <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore reikšmė (µBq/m<sup>3</sup>),  $\sigma$  – pasiskirstymo parametras (radionuklido aktyvumo koncentracijų ore standartinis nuokrypis) (µBq/m<sup>3</sup>), X – <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore aritmetinis vidurkis (µBq/m<sup>3</sup>).

Skaičiuojant metinius aritmetinius <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore vidurkius, Origin programos aplinkoje atmetama didžiausia ir mažiausia <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos reikšmė. Mažiau registravimo ribos <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų reikšmės prilyginamos nuliui ir, vertinant <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore vidurkius, įskaičiuotas jų skaičius. Vidutinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore įvertinimo rezultatai pateikti 15 lentelėje.

Matai	<sup>137</sup> Cs aktyvumo konce	entracija ore, μBq/m <sup>3</sup>
Wietai	Vidutinė aritmetinė X	Labiausiai tikėtina $X_C$
2005	$2,1 \pm 1,8$	$1,4 \pm 1,1$
2006	$1,9 \pm 1,8$	$1,1 \pm 1,0$
2007	$1,1 \pm 0,5$	$0,8 \pm 0,9$
2008	$0,9 \pm 0,5$	$0,6 \pm 0,4$

15 lentelė. Vidutinės aritmetinės ir labiausiai tikėtinos <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore Ignalinos AE regione 2005-2008 metais.

Kaip matyti, labiausiai tikėtinos <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore reikšmės ir jų standartiniai nuokrypiai mažesnės nei vidutinės aritmetinės reikšmės. Šie rezultatai panaudojami tęsiant vidutinių metinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore eigą.

# 4.2 <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore eiga Ignalinos AE regione 1978-2008 metais

Darbe keturis metus vykdyti radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimai yra tęsinys toje pat vietoje, analogiška metodika pradėtų 1977 metų pabaigoje matavimų. Per šį laikotarpį buvo trys skirtingi dirbtinių radionuklidų patekimo į regioną šaltiniai: Kinijos branduoliniai bandymai atmosferoje, vienas po kito pastatyti du Ignalinos AE branduoliniai reaktoriai ir avarija Černobylio AE.

Ilgamečių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore Ignalinos AE regione 1978-2008 metais vidutinės metinės reikšmės grafiškai atidedamos metų skalėje, ir jų kitimas atskirais laikotarpiais aproksimuojamas eksponentine lygtimi:

$$C_t = C_o \exp[-\frac{\ln 2(t - t_0)}{T_{1/2}}],$$
(18)

čia  $C_t$  – vidutinė metinė radionuklido aktyvumo koncentracija ore ( $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>) po t metų,  $C_0$  – vidutinė metinė radionuklido aktyvumo koncentracija ore ( $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>) pradiniu momentu  $t_0$  (metai) ir  $T_{1/2}$  – radionuklido aktyvumo koncentracijos ore mažėjimo pusiau trukmė (metai<sup>-1</sup>) (36 pav.). <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio

ore 2005-2008 metais parodytos kartu su neapibrėžtimis, kurios skaitine verte lygios labiausiai tikėtinų <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore standartiniams nuokrypiams.



36 pav. Metinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore Ignalinos AE regione eiga 1978-2008 metais (linija sujungti taškai) ir rezultatų aproksimacijos eksponentine lygtimi rezultatai (trys raudonos spalvos linijos). Nurodytos kiekvienam iš trijų skirtingų laikotarpių būdingos <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore mažėjimo pusiau trukmės  $T_{1/2}$ : 1 - 1981-1985 metai, 2 - 1986-1988 metai, 3 - 1988-2008 metai.

Kaip matyti iš 36 pav., išsiskiria trys laikotarpiai su kiekvienam jų būdinga <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore mažėjimo pusiau trukme.

1978-1985 metais <sup>137</sup>Cs patekimo į pažemio orą Ignalinos AE rajone šaltinis buvo kinų branduolinio ginklo bandymai atmosferoje (paskutinis bandymas įvykdytas 1980.10.16). Bandymų metu dalijimosi produktai pasiekė aukštesnius troposferos sluoksnius ir stratosferą. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore padidėjimas 1981 metais iki 31  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> yra susijęs su <sup>137</sup>Cs globaliomis iškritomis iš radionuklido stratosferinio rezervuaro. Kaip žinoma, patekusio į stratosferą <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore mažėjimo pusiau trukmė yra apie 1-2 metus. Apskaičiuota 1981-1985 metais vidutinės metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio ore mažėjimo pusiau trukmė  $T_{1/2} \cong 9,7$  mėn.

1986-1988 metais <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore eigą lėmė radionuklidų patekimas į aukštesnius troposferos sluoksnius įvykus avarijai Černobylio AE – tai yra kitas geofiziniu ir radiologiniu požiūriu reikšmingas <sup>137</sup>Cs šaltinis pažemio ore. 1986 m. vidutinė <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija ore FI stotyje siekė 1230 µBq/m<sup>3</sup>, kuri sparčiai mažėjo laike dėl aerozolio dalelių, radionuklido nešėjų, išplovimo iš troposferos su atmosferiniais krituliais ir kitų atmosferos savivalos procesų. 1986-1988 metais vidutinės metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore mažėjimo pusiau trukmė  $T_{1/2} \cong 1,7$  mėn.

Laikui bėgant po avarijos Černobylio AE, <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio ore Ignalinos AE regione turėtų mažėti ir toliau. Tačiau nuo 1988 m. iki šiol <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore mažėjo daug lėčiau ( $T_{1/2} \cong 30$  metų), nei ankstesniais laikotarpiais (1981-1988 metais). <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore mažėjimo pusiau trukmė buvo beveik lygi radionuklido skilimo pusamžiui ( $t_{1/2} = 30,08$  metų). Tai rodo, kad <sup>137</sup>Cs kiekis pažemio ore pastaraisiais metais beveik nesikeičia. Rezultatus galima paaiškinti, kad <sup>137</sup>Cs nuolat patenka iš radionuklido šaltinių aplinkoje atgal į atmosferą, tuo kompensuojamas radionuklido kiekio mažėjimas pažemio ore dėl išplovimo krituliais ir radioaktyvaus skilimo.

<sup>137</sup>Cs antrinis pakėlimas nuo žemės paviršiaus į orą tikriausiai yra pagrindinis radionuklido šaltinis aplinkoje dabartyje. Tai įrodo šuoliški <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore padidėjimai laikotarpiais, kai bandinio ėmimo laikotarpiu FI stotį pasiekusių oro masių judėjimo trajektorijos kerta avarijos Černobylio AE labiausiai užterštus regionus.

Nuo 1988 metų metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio ore kinta su mažėjimo pusiau trukme, kuri beveik sutampa su <sup>137</sup>Cs skilimo pusamžiu.

## 4.3 <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimų analizė

Atskirais laikotarpiais FI stotyje buvo stebimi šuoliški <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai. Padidintos <sup>137</sup>Cs koncentracijos pažemio ore per nagrinėjamą laikotarpį buvo registruotos atskirais atsitiktiniais laikotarpiais balandžio, rugsėjo-spalio ir gruodžio mėnesiais.

Didžiausia <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija ore per pastaruosius keturis metus buvo 2005.10.30-11.05 (17,4  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>). Šiam laikotarpiui, naudojant globalinį oro masių pernašos trajektorijų skaičiavimo ir priemaišų pasiskirstymo ore modelį HYSPLIT, atlikti atnešamų į Ignalinos AE regioną oro masių trajektorijų skaičiavimai. Buvo skaičiuotos atgalinės oro masių pernašos trajektorijos link FI stoties kas 6 valandas. 37 pav. pateikiame kas 24 valandas skaičiuotas paros trukmės atgalinių oro masių trajektorijas.





37 pav. Atgalinės oro masių judėjimo link FI stoties paros trukmės trajektorijos laikotarpiui 2005.10.30-11.06.

Papildomai atgalinės oro masių judėjimo trajektorijos į FI stotį bandinio ėmimo pradžioje, laikotarpio viduryje ir pabaigoje pavaizduotos žemėlapyje (38 pav.).



38 pav. Atgalinės oro masių judėjimo link FI stoties trajektorijos laikotarpiui
2005.10.30-11.05. 1 – atgalinė oro masių judėjimo trajektorija 10.30 12:00, 2 – 11.01
6:00 ir 3 – 11.05 12:00.

Atliekant atgalinių oro masių judėjimo trajektorijų skaičiavimus priėmėme, kad pažemio oras aukštyje iki 100 m yra pilnai išmaišytas. Kontūrine linija pažymėtos teritorijos, kuriose <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija dirvožemio paviršiuje viršija 40 kBq/m<sup>2</sup>.

Kaip matyti, pažemio oro aerozolio dalelių bandinio ėmimo laikotarpiu 2005.10.30-11.05 beveik visą laiką stebima oro masių, praėjusių pažeme virš avarijos Černobylio AE užterštų rajonų, pernaša link FI stoties.

Šuoliški <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai iki didesnių nei 9  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> aktyvumo koncentracijų ore per pastaruosius septynis metus buvo stebėti 8 kartus. Radionuklidų aktyvumo koncentracijų ore matavimo rezultatai šiais laikotarpiais pateikti 16 lentelėje.

16 lentelė. Radionuklidų aktyvumo koncentracijos pažemio ore laikotarpiais, kai buvo stebėti šuoliški <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai.

Bandinio ėmimo	Radionuklido aktyvumo koncentracija ore, $\mu$ Bq/m <sup>3</sup>					
laikotarpis	<sup>137</sup> Cs	<sup>7</sup> Be*	<sup>60</sup> Co	<sup>54</sup> Mn		
1	2	3	4	5		
2002.09.03 - 10	$10,3 \pm 1,8$	$2,7\pm0,3$	< 0,1	< 0,1		
2003.04.26 - 30	$10,2 \pm 1,6$	$2,1\pm0,2$	< 0,1	< 0,1		

1	2	3	4	5
2003.11.15 - 23	$9,4 \pm 1,7$	$2,9\pm0,3$	< 0,1	< 0,1
2004.01.06 - 16	$14,9\pm2,7$	$7,5 \pm 0,6$	$2,8\pm0,7$	< 0,1
2004.01.25 - 02.02	$10,9 \pm 1,6$	$3,1 \pm 0,2$	< 0,1	$1,0 \pm 0,3$
2005.10.30 - 11.05	$17,4 \pm 3,5$	$8,3 \pm 0,7$	< 0,1	< 0,1
2005.12.31 - 2006.01.07	$8,9 \pm 1,5$	$1,1 \pm 0,1$	< 0,1	< 0,1
2006.04.15 - 23	$10,0 \pm 1,8$	$13,5 \pm 1,1$	< 0,1	< 0,1
2007.12.01 - 08	6,1 ± 0,9	$2,4 \pm 0,2$	< 0,1	< 0,1
			$* mBq/m^3$	

Lentelėje išskirtais laikotarpiais buvo skaičiuojamos 72 valandų (vidutinio sinoptinio periodo) trukmės atgalinės oro masių pernašos trajektorijos link FI stoties kas 6 valandas. Išsami <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimų Ignalinos AE regione 2005-2006 metais analizė pateikiama 1 priede. Pastaraisiais metais <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai tampa mažiau ryškūs ir jų pasitaiko vis rečiau.

Lentelėje pateiktas unikalus <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimo iki 6  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> 2007.12.01-08 atvejis įvertintas, kaip šuoliškas <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų padidėjimas ir atlikti atgalinių oro masių pernašos į FI stotį trajektorijų skaičiavimai (39 pav.).

Unikalios meteorologines sąlygos buvo susiklosčiusios 2007.12.01 apie 15:00 UTC. Kaip matyti 39 pav., oro masės, prieš dvi paras praėjusios virš Ignalinos AE regiono, grįžo atgal. Šiuo laikotarpiu Ignalinos AE ventiliacinė sistema ir FI stoties pažemio oro aerozolio dalelių bandinių ėmimo sistema galėjo siurbti pačios Ignalinos AE išmestus į pažemio orą radionuklidus. Tuo irgi gali būti paaiškintas <sup>137</sup>Cs aktyvumo padidėjimas šio laikotarpio bandinyje. Tokie efektai istoriškai buvo stebimi Bilibino AE Sibire [140]. Esant –60 °C oro temperatūrai žemesniuose oro sluoksniuose susidarydavo inversinės sąlygos, kad ventiliacinės sistemos sukurtas oro srautas buvo vienintelis oro judėjimo efektas ir išmesti radionuklidai grįždavo atgal, sukeldami rimtą pavojų AE personalui. Tokios oro masių trajektorijos Ignalinos AE regione stebimos pirmą kartą per visą stebėjimų laikotarpį nuo 1978 metų.



39 pav. Atgalinės oro masių judėjimo link FI stoties trajektorijos, pasiekusios matavimo stotį 2007 m. gruodžio 1, 2 d.

16 lentelėje pateiktų atvejų analizė (1 priedas) patvirtina faktą, kad beveik visais atvejais šuoliški <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore Ignalinos AE regione padidėjimai stebimi, kai FI stotį pasiekiančių oro masių trajektorijos kerta užterštas <sup>137</sup>Cs teritorijas Ukrainoje, Baltarusijoje ir Rusijoje.

Vertinant šuoliškų <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimų sutapimus su oro pernaša iš Černobylio AE rajonų, galima teigti, kad nustatytas realus nuolat pasikartojantis <sup>137</sup>Cs patekimo į mūsų šalies teritoriją erdvinis šaltinis – teritorijos, užterštos <sup>137</sup>Cs po avarijos Černobylio AE.

#### 4.4 Radionuklidų aktyvumo koncentracijos iškritose

Išplovimas krituliais yra efektyvus radionuklidų pašalinimo iš pažemio oro procesas. Ignalinos AE išmestų radionuklidų išplovimą krituliais artimoje zonoje iki 30 km galima įvertinti teoriškai skaičiuojant AE fakelo ir kritulių zonų sąveiką skirtingomis meteorologinėmis sąlygomis, kai radionuklidų išmetimo per AE kaminus greičiai ir radionuklidų išplovimo krituliais koeficientai yra žinomi. Pastarasis įvertinimas taip imlus kvalifikuotam darbui, kad dažniausiai neatliekamas.

Todėl tikslinga atlikti eksperimentinius Ignalinos AE pagamintų radionuklidų ir tuo pačiu kitų radionuklidų kiekio iškritose matavimus.

Iškritų bandinių paėmimo, apdorojimo ir radionuklidų aktyvumo matavimo bandiniuose metodika pateikiama Metodikos skyriuje (53 spl.). Beveik visuose iškritų bandiniuose buvo registruojamas <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co ir <sup>7</sup>Be gama spinduliavimas. Radionuklidų srautai iš oro į dirvožemio paviršių, *F*, Bq/(m<sup>2</sup> mėnuo), stambiadispersinei ir smulkiadispersinei iškritų bandinio frakcijoms pateikiami 17 lentelėje.

17 lentelė. Radionuklidų srautai iš oro į dirvožemio paviršių Ignalinos AE regione 2005-2008 m.

	Radion	uklidų srautai	iš oro į	dirvožemio pa	viršių, <i>F</i> , Bq/(n	n <sup>2</sup> mėnuo)	
Bandinio ėmimo	smulk	iadispersinė i	škritų	stambiadispersinė iškritų			
laikas	ba	ndinio frakci	ja	bandinio frakcija			
	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>7</sup> Be	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>7</sup> Be	
2005.01.23-03.17	0,5	0,11	28	0,021	0,006	0,25	
2005.04.20-05.29	1,5	< 0,03	22	0,012	< 0,002	0,14	
2005.05.29-07.12	1,5	0,12	26	0,011	< 0,002	< 0,05	
2005.07.12-09.26	1,7	0,10	19	0,005	0,03	< 0,05	
2005.09.26-11.05	0,8	< 0,03	1,8	0,011	< 0.002	< 0,05	
2006.01.31-03.12	0,9	0,06	41	0,020	0,011	< 0,05	
2006.03.12-07.20	1,2	0,06	17	0,012	0,005	< 0,05	
2006.07.20-25	2,2	< 0,03	21	0,109	0,042	< 0,05	
2006.07.25-08.07	1,8	< 0,03	16	0,072	0,016	< 0,05	
2006.08.07-09.27	1,6	0,10	11	0,009	< 0,002	< 0,05	
2006.09.27-11.03	0,5	0,05	9	0,022	< 0,002	< 0,05	
2007.01.20-03.01	0,9	0,08	21	0,023	0,012	0,34	
2007.03.01-06.06	0,9	0,05	19	0,015	< 0,002	0,11	
2007.06.06-07.10	1,0	< 0,03	23	0,009	< 0,002	< 0,05	
2007.07.10-10.06	0,7	< 0,03	10	0,008	< 0,002	< 0,05	
2007.10.06-11.17	1,1	0,07	8	0,017	< 0.002	< 0,05	
2008.01.31-03.06	0,8	< 0,03	25	0,018	< 0,002	0,18	
2008.03.06-04.23	1,8	< 0,03	23	0,020	< 0,002	< 0,05	
Vidutinė vertė:	$1,1 \pm 0,3$	$0,05 \pm 0,02$	$18 \pm 3$	$0,015 \pm 0,005$	$50,005 \pm 0,002$	$0,05 \pm 0,01$	

Radionuklidų srautų iš oro į dirvožemio paviršių vidutinės vertės apskaičiuotos kaip svertinis radionuklidų srautų iš oro į dirvožemio paviršių skirtingais bandinių

kaip svertinis radionuklidų srautų iš oro į dirvožemio paviršių skirtingais bandinių ėmimo laikotarpiais vidurkis.

Kaip matyti, atskiruose iškritų bandiniuose registruojamas <sup>60</sup>Co gama spinduliavimas. Iškritų bandinių paėmimo vietoje per ilgą bandinių ėmimo laikotarpį buvo surenkama keletas oro ėminių, kuriuose išmatuoti <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn aktyvumai.

Radionuklidų aktyvumai smulkiadispersinėje iškritų bandinių frakcijose buvo 10-100 kartų didesni nei stambiadispersinėje iškritų bandinių frakcijose.

<sup>7</sup>Be srautų iš oro į dirvožemio paviršių reikšmės gautos remiantis statistiškai patikimai išmatuotais dydžiais ir gali būti panaudotos kosmogeninių radionuklidų balanso troposferoje vertinimams. 18 lentelėje pateikti <sup>7</sup>Be srautai iš oro į dirvožemio paviršių, *F*, Bq/(m<sup>2</sup> mėnuo), 2005-2008 metais ir ankstesniais 1980-1983 [14], 1997-1999 [16] metais.

18 lentelė. <sup>7</sup>Be srautai iš oro į dirvožemio paviršių 1980-1983, 1997-1999, 2005-2008 metais.

Metai	F, Bq/(m <sup>2</sup> metai)	Metai	F, Bq/(m <sup>2</sup> metai)	Metai	F, Bq/(m <sup>2</sup> metai)
1980	41	1997	68	2005	97
1981	50	1998	67	2006	114
1982	46	1999	53	2007	82
1983	35			2008	48

<sup>7</sup>Be srautų iš oro į dirvožemio paviršių Ignalinos AE regione kaita per pastaruosius 30 metų gali būti sąlygota antropogeninio poveikio klimatui.

<sup>137</sup>Cs srautų iš oro į dirvožemio paviršių reikšmės atspindi <sup>137</sup>Cs dinamiką sistemoje "Pažemio oras–dirvožemio paviršius". Laikydami iki 100 m aukščio išmaišytą oro sluoksnį virš teritorijos, apribotos atstumu, kurį oro masės praeina trijų parų sinoptinio laikotarpio eigoje, sąlyginiu "Pažemio oru" ir teritoriją, kurioje pernešamos oro masės, sąlyginiu "Dirvožemio paviršiumi", rodyklėmis parodome trijų pagrindinių <sup>137</sup>Cs srautų kryptis (40 pav.).



40 pav. S – radionuklido srautas, patenkantis į pažemio orą iš visų veikiančių atominių elektrinių ir kitų šaltinių,  $F_1$  – radionuklido srautas iš pažemio oro į dirvožemio paviršių.  $F_2$  – radionuklido srautas iš dirvožemio paviršiaus į orą.

Nagrinėjamoje teritorijoje atsiduria trys atominės elektrinės – Ignalinos AE, Černobylio AE ir Leningrado AE, augalijoje ir dugno nuosėdose susikaupęs "bombinis" ir "Černobylinis" <sup>137</sup>Cs; šioje teritorijoje vyksta medienos, sausos žolės ir durpių deginimas ir yra kiti <sup>137</sup>Cs šaltiniai.

Eksperimentiniai <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos iškritose rezultatai ir, kaip buvo parodyta 4.2 skyriuje, nustatytas faktas, kad nuo 1988 metų metinės <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio ore kinta su mažėjimo pusiau trukme, kuri beveik sutampa su <sup>137</sup>Cs skilimo pusamžiu, leidžia padaryti išvadą, kad <sup>137</sup>Cs srautų *S* ir  $F_2$ suma lygi <sup>137</sup>Cs srautui  $F_1$ . Pagal radionuklidų aktyvumo matavimus iškritose (17 lentelė) gauta vidutinė <sup>137</sup>Cs srauto iš oro į dirvožemio paviršių 2005-2008 reikšmė  $\cong$ 1,1 Bq/(m<sup>2</sup> mėnuo) atspindi <sup>137</sup>Cs srautą į pažemio orą iš visų radionuklido emisijos šaltinių Ignalinos AE regione.

2005-2008 metais vidutinė metinė <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija ore buvo apie 1,5  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> (žr. 14 lentelę), o vidutinis metinis <sup>137</sup>Cs srautas iš oro į žemės paviršių buvo apie 13 Bq/(m<sup>2</sup> metai). Šie rezultatai sudaro galimybę įvertinti <sup>137</sup>Cs, išlėkusio iš Ignalinos AE, srauto į "Pažemio orą" dalį. Naudojant vidutinę metinę <sup>137</sup>Cs emisiją iš Ignalinos AE ventiliacinių kaminų į aplinką apie 100 MBq (žr. 7 lentelę), suskaičiuota, kad Ignalinos AE pagaminto <sup>137</sup>Cs vidutinė metinė aktyvumo koncentracija ore būtų apie 0,1  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>, o iškritose apie 1,5 Bq/(m<sup>2</sup> metai). Galima teigti, kad apie 10 % <sup>137</sup>Cs kiekio esančio ore ir iškrentančio į dirvožemio paviršių yra iš Ignalinos AE.

Apibendrinant aukščiau skyriuje pateiktą informaciją, galima teigti, kad aplinkoje į pažemio orą <sup>137</sup>Cs nuolat patenka iš veikiančių atominių elektrinių ir su antriniu priemaišų pakėlimu užterštose teritorijose, o jo patekimas kompensuojamas išplovimu krituliais ir radioaktyviuoju skilimu. Tikriausiai, <sup>137</sup>Cs dar ilgą laiką išliks vienu svarbiausių dirbtinių radionuklidų pažemio ore.

# 4.5 Trumpaamžių radionuklidų aktyvumo koncentracijos Ignalinos AE ventiliacinėje sistemoje

Ignalinos AE garo kondensacijos ir ventiliacinės sistemos ore (žr. Literatūros apžvalga, 29 psl.) susidaro radioaktyvių aerozolio dalelių ir oro mišinys, išlekiantis per kaminus į pažemio orą. 2008.04.22-24 tikslu nustatyti surinktų ant filtrų inertinių dujų radionuklidų skilimo produktų aktyvumo koncentracijas tarpiniuose taškuose radionuklidų kelyje nuo pasigaminimo vietos iki pažemio oro, išmatuotos (bandinių

ėmimas prapučiant oro ir aerozolinių dalelių mišinį per aerozolio dalelių filtrus) radionuklidų aktyvumo koncentracijos ventiliacinio oro sraute po garo turbinos ir deaeratoriaus.

Radionuklidų, surinktų ant aerozolio dalelių filtrų, aktyvumo koncentracijos Ignalinos AE veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos atskirų įrenginių ore pateiktos 19 lentelėje.

19 lentelė. Radionuklidų, surinktų ant aerozolio dalelių filtrų, aktyvumo koncentracijos Ignalinos AE veikiančio reaktoriaus ventiliacinės sistemos komponentėse, C (Bq/m<sup>3</sup>).

Radionuklidas	Išlaikymo kamera		Aktyvumo mažinimo įrenginys		
_	Iki kameros	Po kameros	Iki įrenginio	Po įrenginio	
<sup>88</sup> Rb	$4.5  ext{ x10}^{10}$	$3.2 \times 10^{8}$	$3.6 \times 10^7$	_	
<sup>91</sup> Sr	$7.4 \mathrm{x} 10^7$	$1.1 \times 10^{7}$	—	$7.8 \times 10^3$	
<sup>131</sup> I	$4.7 \times 10^{6}$	$4.9 \times 10^{5}$	$1.1 \times 10^{6}$	$4.2 \times 10^{2}$	
<sup>137</sup> Cs	$1.3 \mathrm{x} 10^7$	$2.6 \times 10^{6}$	$3.4 \times 10^{3}$	$6.3 \times 10^2$	
<sup>138</sup> Cs	$2.5 \times 10^{10}$	$2.3 \times 10^{9}$	$3.4 \times 10^{6}$	$1.7 \times 10^{6}$	
<sup>139</sup> Ba	$1.6 \times 10^{10}$	$5.8 \times 10^{8}$	$2.0 \times 10^{6}$	$1.5 \times 10^{6}$	
<sup>140</sup> Ba	$3.4 \mathrm{x} 10^7$	$7.6 \times 10^{6}$	$2.1 \times 10^4$	_	

"-", – radionuklido aktyvumas bandinyje žemiau registravimo ribos

Galima manyti svarbiausias rezultatas yra <sup>88</sup>Rb, <sup>138</sup>Cs, <sup>139</sup>Ba ir <sup>140</sup>Ba, rastų aerozolio dalelių filtrų bandiniuose, aktyvumo koncentracijos ežektorinėse dujose prieš išlaikymo kamerą, kurios yra  $3,4\times10^7 - 4,5\times10^{10}$  Bq/m<sup>3</sup> dydžių intervale. Šie trumpaamžiai radionuklidai turi pirmtakus – inertinių dujų radionuklidus (<sup>88</sup>Kr, <sup>138</sup>Xe, <sup>139</sup>Xe, <sup>140</sup>Xe). Rezultatai rodo, kad inertinių dujų radionuklidai, įveikę vandens ir garo ribą būgne-separatoriuje, aušinamuose vandens garuose po turbinos virsta šarminių ir žemės šarminių metalų elementais: <sup>88</sup>Rb  $T_{1/2}$ =17,8 min., <sup>138</sup>Cs  $T_{1/2}$ =33,4 min. ir <sup>139</sup>Ba  $T_{1/2}$ =80,6 min. Jie tampa aerozolio gamybos centrais, absorbuoja vandens molekules ir mažiau nei per keliolika minučių ant jų, kaip kondensacijos branduolių, išauga aerozolio dalelės, kurios surenkamos ant aerozolinių filtrų.

Išdėstytą iliustruoja užregistruotų trumpaamžių <sup>88</sup>Rb, <sup>138</sup>Cs, <sup>139</sup>Ba ir <sup>140</sup>Ba susidarymo ir skilimo grandinėlės:

$$\overset{88}{_{36}} Kr \xrightarrow{\beta^{-}(2.84h)} \overset{88}{_{37}} Rb \xrightarrow{1836.00 \, keV(0.23)}{\beta^{-}(17.773 \, \text{min})} \overset{88}{_{38}} Sr_{stab}.$$

$$\begin{array}{c} 138\\53 J \longrightarrow \\ \beta^{-}(6.23s) \end{array} \xrightarrow{138}_{54} Xe \longrightarrow \\ \beta^{-}(14.08 \text{ min}) \end{array} \xrightarrow{138}_{55} Cs \longrightarrow \\ \beta^{-}(33.41 \text{ min}) \end{array} \xrightarrow{138}_{56} Ba_{stab.}$$

$$\begin{array}{c} 139\\53 J \longrightarrow \\ \beta^{-}(2.280s) \end{array} \xrightarrow{139}_{54} Xe \longrightarrow \\ \beta^{-}(39.68s) \longrightarrow \\ \beta^{-}(39.68s) \end{array} \xrightarrow{139}_{55} Cs \longrightarrow \\ \frac{1283.23keV(0.07)}{\beta^{-}(9.27 \text{ min})} \xrightarrow{139}_{56} Ba \longrightarrow \\ \beta^{-}(80.6 \text{ min}) \longrightarrow \\ \beta^{-}(14.08 \text{ min}) \longrightarrow \\ \beta^{-}(13.60s) \longrightarrow \\ \beta^{-}(39.68s) \longrightarrow \\ \beta^{-}(63.7s) \longrightarrow \\ \beta^{-}(63.7s) \longrightarrow \\ \beta^{-}(12,7527d) \longrightarrow \\ \beta^{-}(12,7527d) \longrightarrow \\ \beta^{-}(1.67855d) \longrightarrow \\ \beta^{-}(1.6785d) \longrightarrow \\ \beta^{-}(1.6$$

Vardiklyje nurodytas radionuklido skilimo pusamžis, skaitiklyje – radionuklido spinduliuojamo gama kvanto energija, pagal kurią buvo vertinamas radionuklido aktyvumas, ir gama kvanto išspinduliavimo tikimybė radionuklido skilimo metu. *"Stab."* grandinėlės pabaiga – stabilus izotopas.

Stebėtas procesas, kai aušinamuose vandens garuose po turbinos inertinių dujų radionuklidai virsta šarminių ir žemės šarminių metalų elementais bei tampa aerozolio dalelių gamybos centrais yra analogiškas klasikiniam procesui atmosferoje, kai emanacijų (<sup>222</sup>Rn, <sup>220</sup>Tn, <sup>219</sup>An) skilimo produktai labai greitai atsiduria aerozolio dalelių sudėtyje [2, 141].

Toks dujų ir aerozolio dalelių mišinys po užlaikymo ir filtravimo ventiliacinės sistemos įrenginiuose išmetamas per AE kaminus.

### SKYRIAUS IŠVADOS

1. Metinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore kaita regione 1988-2008 m. aprašyta eksponentine funkcija su mažėjimo pusiau trukme  $T_{1/2} \cong 30$  metų.

 Vidutinė <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos iškritose Ignalinos AE aplinkoje 2005-2008 m. reikšmė gauta lygi 1,1 Bq/(m<sup>2</sup> mėnuo).

3. Šuoliški <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore padidėjimai koreliuoja su oro masių pernašos trajektorijomis, kertančiomis teritorijas, užterštas po avarijos Černobylio AE iki šiol liekančias <sup>137</sup>Cs patekimo į orą šaltiniu.

4. Vieno kontūro atominės elektrinės aušinamame vandens gare inertinių dujų radionuklidai, skildami virsta šarminių ir žemės šarminių metalų elementais, tampa aerozolio gamybos centrais, absorbuoja vandens molekules ir per keliolika minučių ant jų, kaip kondensacijos branduolių, išauga radioaktyvios aerozolio dalelės.

#### 5. Surinktų filtrais aerozolio dalelių išplovimas

Surinktų filtrais aerozolio dalelių bandiniai išplovimo vandeniu eksperimentams buvo paimti skirtingose sistemos "Ignalinos AE – aplinka" vietose: 1) pažemio ore FI stotyje Ignalinos AE regione 2004-2005 metais, kai ore buvo registruojami AE pagaminti radionuklidai, 2) Ignalinos AE veikiančio ir sustabdyto reaktorių kaminų ore (išlėkose į orą) 2006-2007 metais ir papildomai veikiančio Ignalinos AE reaktoriaus ežektorinių dujų sraute į ventiliacinės sistemos įrenginius 2008 metais.

#### 5.1 Pažemio ore surinktų filtrais aerozolio dalelių išplovimas

Pažemio ore surinktų filtrais aerozolio dalelių išplovimo eksperimentams atrinkome šešis pažemio oro aerozolio dalelių bandinius, paimtus FI stotyje 2004-2005 metais laikotarpiais, kai FI stotis buvo pavėjinėje Ignalinos AE pusėje (žr. 14 lentelę, bandiniai Nr. 2906, 2922, 2947, 2948, 2956, 2985; prasiurbto oro tūris 200 000-300 000 m<sup>3</sup>). Šiuose bandiniuose visada buvo registruojamas <sup>60</sup>Co gama spinduliavimas. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore bandinių ėmimo laikotarpiais buvo 0,9 - 2,4  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>, išskyrus 2005.01.29-02.05 paimtą bandinį, kai <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore buvo 4,5  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup>.

Dar keturi pažemio oro aerozolio dalelių bandiniai buvo paimti laikotarpiais, kai pažemio ore buvo išmatuotos padidintos <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos ore, atitinkamai 5,5, 4,4, 6,2 ir 17,2  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> (bandiniai Nr. 2973, 2974, 2977, 2978). Paskutinio 2005.11.26-12.04 bandinio ėmimo metu <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija ore buvo 2,5  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> (bandinys Nr. 2982). Visuose šiuose bandiniuose <sup>60</sup>Co gama spinduliavimas nebuvo registruojamas.

<sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumai pažemio oro aerozolio dalelių bandiniuose iki išplovimo eksperimento, A (mBq), ir po eksperimento,  $A_{nt}$  (mBq), bei išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykiai su radionuklidų aktyvumais pradiniame bandinyje, W (%), pateikiami 20 lentelėje.

20 lentelė. <sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumai pažemio oro aerozolio dalelių bandiniuose iki išplovimo eksperimento ir po išplovimo eksperimento bei išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykiai su radionuklidų aktyvumais pradiniame bandinyje.

	Aerozolio		<sup>137</sup> Cs			<sup>60</sup> Co		
E1l. Nr	bandinio ėmimo	Aktyvumas, mBq		W %	Aktyvumas, mBq		W %	
	laikotarpis	A	$A_{nt}$	,	A	$A_{nt}$	,	
1	2	3	4	5	6	7	8	
2906	2004.03.20-30	440	270	$39 \pm 10$	165	130	$21 \pm 7$	
2922	2004.07.26-08.03	305	210	$31\pm8$	300	230	$23\pm 6$	
2947	2005.01.02-08	170	120	$29\pm7$	270	210	$22 \pm 7$	
2948	2005.01.29-02.05	1250	390	$69 \pm 15$	105	80	$24\pm 6$	
2956	2005.04.21-05.01	495	420	$15\pm3$	760	570	$25\pm 6$	
2985	2005.12.27-31	420	370	$12 \pm 3$	190	140	$26 \pm 7$	
	Vidutinė vertė			_			$24 \pm 7$	
2973	2005.09.26-10.02	1640	1170	$29\pm 6$	_	_	_	
2974	2005.10.02-09	1230	810	$34\pm7$	_	_	_	
2977	2005.10.22-30	860	490	$43 \pm 7$	_	_	_	
2978	2005.10.30-11.05	4280	2215	$48\pm7$	_	_	_	
2982	2005.11.26-12.04	185	130	$30\pm5$	_	_	_	
"–" – radionuklido aktyvumas bandinyje žemiau registravimo ribos								

Pažemio oro bandiniuose, paimtuose laikotarpiais, kai FI stotis buvo pavėjinėje Ignalinos AE pusėje, išplautų iš aerozolio dalelių bandinių <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose kito plačiame intervale nuo 12 % iki 39 %, išskyrus vieną atvejį 2005.01.29-02.05, kai tuo laikotarpiu buvo stebima oro masių pernaša iš avarijos Černobylio AE užterštų teritorijų. Toks išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykių su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose verčių išsibarstymas paaiškinamas skirtingais <sup>137</sup>Cs šaltiniais pažemio ore bandinių ėmimo laikotarpiais. Pažemio oro bandiniuose, paimtais laikotarpiais, kai FI stotis nebuvo Ignalinos AE pavėjinėje pusėje, išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose paimtuose <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandinių frakcijoje <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose, paimtuose <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore šuoliškų padidėjimų laikotarpiais (bandiniai Nr. 2948, 2977, 2978), išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose, paimtuose <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore šuoliškų padidėjimų laikotarpiais (bandiniai Nr. 2948, 2977, 2978), surinktuose kitais laikotarpiais. Trijuose bandiniuose, paimtuose 2005.02.29-02.05, 2005.10.22-30 ir 2005.10.30-11.05, kai į FI stotį galėjo patekti oro masės, praeinančios virš po avarijos Černobylio AE užterštų teritorijų, išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose buvo 69, 43 ir 48 %.

Išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcojoje <sup>60</sup>Co aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose buvo intervale nuo 21 % iki 27 %, o vidutinis išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>60</sup>Co aktyvumo santykis su radionuklido aktyvumu pradiniame bandinyje buvo 24  $\pm$  7 %. Akivaizdu, kad <sup>60</sup>Co šaltinis yra išlėkos iš Ignalinos AE, ir gauti išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>60</sup>Co aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose atspindi aerozolio dalelių savybių kitimą 3,5 km kelyje nuo AE kamino iki bandinių ėmimo taško.

Vidutiniai išplautoje aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumų santykiai su radionuklidų aktyvumais pradiniuose bandiniuose buvo 25 % ir 24 %, atitinkamai. Šios vertės artimos vidutiniam kontinentinės oro masės aerozolio dalelių masės kiekiui tirpioje frakcijoje – 28 % (žr. 37 psl.). <sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co dalis pažemio ore surinktų aerozolio dalelių vandenyje tirpioje frakcijoje buvo 32 % ir 22 %, atitinkamai (žr. 38 psl.).

Aerozolio dalelių bandiniuose, paimtuose kai į FI stotį galėjo patekti oro masės, praeinančios virš po avarijos Černobylio AE užterštų teritorijų, išplautoje iš aerozolio dalelių bandinių frakcijoje <sup>137</sup>Cs aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose buvo didesni, negu bandiniuose, surinktuose kitais laikotarpiais. Pažemio oro aerozolio dalelių bandiniuose, surinktuose po miškų gaisrų avarijos Černobylio AE užterštose teritorijose, <sup>137</sup>Cs dalis aerozolio dalelių vandenyje tirpioje frakcijoje siekė 60 % (žr. 29 psl.).

Gauti išplautoje aerozolio dalelių bandinių, surinktų filtrais, frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykiai su radionuklidų aktyvumais pradiniuose bandiniuose gerai koreliuoja su literatūroje pateiktais radionuklidų pasiskirstymo tarp tirpios ir netirpios frakcijų rezultatais.

#### 5.2 IAE ventiliaciniame ore surinktų filtrais aerozolio dalelių išplovimas

Ignalinos AE ventiliaciniame ore surinktų filtrais aerozolio dalelių išplovimo eksperimentams buvo paimti 7 aerozolio dalelių bandiniai Ignalinos AE veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliaciniame kamine ir 8 aerozolio dalelių bandiniai neveikiančio 1 bloko reaktoriaus ventiliaciniame kamine 2006-2007 metais. Ignalinos AE 2 ir 1 blokų reaktorių ventiliacinio oro aerozolio dalelių bandiniai buvo paimti lygiagrečiai, beveik tais pačiais laikotarpiais.

<sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumai Ignalinos AE ventiliacinio oro aerozolio dalelių bandiniuose iki išplovimo eksperimento, A (mBq), ir po eksperimento,  $A_{nt}$  (mBq), bei išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykiai su radionuklidų aktyvumais pradiniame bandinyje, W (%), pateikiami 21 lentelėje.

21 lentelė. 137Cs ir 60Co aktyvumai Ignalinos AE ventiliacinio oro aerozolio dalelių
bandiniuose iki išplovimo eksperimento ir po išplovimo eksperimento bei išplautoje
aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykiai su radionuklidų
aktyvumais pradiniame bandinyje.

Bandinio <sup>137</sup> Cs			5	<sup>134</sup> Cs				<sup>54</sup> Mn			<sup>60</sup> Co		
ėmimo laikas	Akty	yvu- mBa		Akt mas	yvu- mBa		Akty mas	yvu- mBa		Akty mas	/vu- mBa		
2 bloko	4	4	<i>W</i> , %	4	4	W, %	4	4	W, %	4	4	W, %	
veikiantis	Л	$\Lambda_{nt}$		Л	$\Lambda_{nt}$		Л	$\Lambda_{nt}$		Л	$\Lambda_{nt}$		
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	
2006.01. 10-19	190	65	66±6	_	_	_	130	45	65±15	420	120	71±17	
2007.06 01-07	1760	210	88±7	85	25	71±25	90	40	56±20	195	70	64±14	
2007.06. 07-15	2040	505	75±6	125	40	68±20	165	50	70±15	270	80	70±16	
2007.06. 19-26	1580	265	83±10	105	45	57±15	170	35	79±20	605	190	69±16	
2007.06. 26-07.03	350	120	66±6	60	_	_	1030	300	71±17	2420	830	66±15	
2007.07. 10-16	665	180	73±8	70	70	0	225	60	73±20	470	150	68±17	
2007.07. 17-24	165	50	70±7	_	_	-	225	_	_	310	120	61±14	
Vidutinė vertė			$74 \pm 22$			-			69 ± 25			67 ± 17	
1 bloko reaktorius, neveikiantis													
2005.12.23- 2006.01.03	215	160	26±3	_	-	_	-	-	_	185	145	22±3	

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
2006.01. 3-9	235	170	28±3	_	_	_	-	-	-	210	160	24±4
2006.01. 23-29	60	50	17±2	_	_	_	30	_	_	150	130	13±2
2007.06. 01-07	40	35	12±2	_	_	_	_	_	_	155	110	29±5
2007.06. 07-15	120	100	17±2	_	_	_	40	_	_	250	220	12±3
2007.06. 19-26	295	230	22±3	_	_	_	_	_	_	250	200	20±4
2007.06. 26-07.03	780	485	38±5	605	360	40±10	35	_	_	345	290	16±3
2007.07. 10-16	60	40	33±4	40	_	_	_	_	_	240	190	21±4
Vidutinė vertė			$24 \pm 5$			_			_			$20 \pm 5$

"-" – radionuklido aktyvumas bandinyje žemiau registravimo ribos

Visuose ventiliacinio oro aerozolio dalelių bandiniuose buvo registruojamas  $^{137}$ Cs ir  $^{60}$ Co gama spinduliavimas.  $^{134}$ Cs,  $^{54}$ Mn gama spinduliavimas buvo registruojamas tiktai bandiniuose, paimtuose Ignalinos AE veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliaciniame kamine. Ignalinos AE neveikiančio reaktoriaus ventiliaciniame kamine paimtuose bandiniuose sąlyginai trumpaamžių  $^{134}$ Cs,  $^{54}$ Mn gama spinduliavimas nebuvo registruojamas. Vidutinis išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykis su radionuklidų aktyvumais pradiniame bandinyje buvo skaičiuotas kaip vidutinė kiekvienam registruojamam radionuklidui veikiančio ir neveikiančio reaktoriaus ore aritmetinė W vertė.

 $^{137}$ Cs aktyvumų bandiniuose prieš ir po išplovimą santykiai veikiančiame ir neveikiančiame reaktoriuje skyrėsi reikšmingai: 74 ± 22 % ir 24 ± 5 %, atitinkamai.

Išplautoje aerozolio dalelių bandinių, surinktų Ignalinos AE veikiančio ir neveikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore, frakcijoje <sup>60</sup>Co aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose buvo 67  $\pm$  17 % ir 20  $\pm$  5 %, atitinkamai.

Išplautoje aerozolio dalelių bandinių, surinktų Ignalinos AE veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore, frakcijoje <sup>54</sup>Mn aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose buvo  $69 \pm 25 \%$ . <sup>54</sup>Mn aktyvumai bandiniuose, paimtuose Ignalinos AE neveikiančio reaktoriaus ventiliaciniame kamine, buvo žemiau radionuklido aktyvumo registravimo ribos.

Išplautoje aerozolio dalelių bandinių, surinktų Ignalinos AE neveikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore, frakcijoje <sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose – 24 % ir 20 %, atitinkamai – yra artimi vidutiniam kontinentinės oro masės aerozolio dalelių masės kiekiui tirpioje frakcijoje – 28 % (žr. 37 psl.) ir <sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumų santykiams, nustatytiems pažemio ore (žr. 20 lentelę).

Išplautoje aerozolio dalelių bandinių, surinktų Ignalinos AE veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore, frakcijoje <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn aktyvumų santykiai su radionuklido aktyvumais pradiniuose bandiniuose buvo 74 %, 67 % ir 69 %, atitinkamai ir juos galima palyginti su <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co ir <sup>54</sup>Mn dalimi vandenyje tirpioje aerozolio dalelių frakcijoje Ignalinos AE veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore: 78 %, 99 % ir 100 %, atitinkamai (žr. 38 psl.).

Radionuklidų aktyvumų bandiniuose prieš ir po išplovimo eksperimentų santykis tikriausiai atspindi santykį tarp radionuklidų, buvusių dalelių, kurių pagrindinė sudėtinė dalis buvo vandens molekulės, ir tarp radionuklidų, buvusių vandenyje netirpioje aerozolio dalelių frakcijoje, pasiliekančioje ant filtro.

Vandens virsmas garu ir garo kondensacija, esant persotintam slėgiui, vyksta tiktai veikiančiame reaktoriuje. Atominėje elektrinėje oras prieš patekdamas į ventiliacijos sistemą iš atmosferos yra filtruojamas. Ežektorinės dujos yra persotinti vandens garai, kur kitų priemaišų žymesnio kiekio nėra. Tirpių aerozolinių dalelių (su radioaktyviais branduoliais savo sudėtyje) susidarymui sąlygos čia itin palankios. Procesas analogiškas aerozolio dalelių susidarymui atmosferoje dalelių augimo epizoduose esant prisotintų vandens garų slėgiui.

Išplovimo eksperimente vyksta patekusių į vandenį stabilių ore (dėl paviršinių įtempimo jėgų) aerozolio dalelių, kurių pagrindinė sudėtinė dalis yra vandens molekulės, sugriovimas. Vandenyje molekulių šiluminis judėjimas suardo aerozolio dalelių paviršiuje esančių vandens molekulių išsidėstymą, dingsta paviršinio įtempimo jėgos ir aerozolio dalelių sudėtyje esančios vandens molekulės ir radionuklidai tiesiog atsiduria tirpale. Literatūros šaltiniuose aerozolio dalelės, susidariusios dėl vandens molekulių absorbcijos įvardijamos kaip tirpi aerozolio dalelių frakcija. Tokiu būdu, darbe gauti eksperimentiniai rezultatai gerai sutampa su literatūros šaltiniuose pateiktais aerozolio dalelių augimo prisotintuose vandens garuose epizodų aprašymais.

Darbe buvo atlikti papildomi aerozolio dalelių bandinių, surinktų Ignalinos AE veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos ore, išplovimo eksperimentai. Šių tyrimų tikslas buvo įvertinti aerozolio dalelių bandinių, surinktų skirtingose ventiliacinės sistemos dalyse, išplovimą radionuklidų kelyje nuo jų susidarymo vietos iki ventiliacinio kamino.

Aerozolio dalelių, surinktų filtrais Ignalinos AE veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliaciniame ore, išplovimo eksperimentams buvo paimti aerozolio dalelių bandiniai iki išlaikymo kameros, po išlaikymo kameros, iki aktyvumo mažinimo įrenginio (žematemperatūrinių aktyvuotos anglies adsorberių) ir po aktyvumo mažinimo įrenginio 2008 metais.

<sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumai Ignalinos AE veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos oro aerozolio dalelių bandiniuose iki išplovimo eksperimento, A (mBq), ir po eksperimento,  $A_{nt}$  (mBq), bei išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykiai su radionuklidų aktyvumais pradiniame bandinyje, W (%), pateikiami 22 lentelėje.

22 lentelė. <sup>137</sup>Cs ir <sup>60</sup>Co aktyvumai Ignalinos AE veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos oro aerozolio dalelių bandiniuose iki išplovimo eksperimento ir po išplovimo eksperimento bei išplautoje aerozolio dalelių bandinio frakcijoje radionuklidų aktyvumų santykiai su radionuklidų aktyvumais pradiniame bandinyje.

		<sup>137</sup> Cs		<sup>60</sup> Co			
Bandinio ėmimo vieta	Aktyvum	as, mBq	W, %	Aktyvum	W %		
-	A	$A_{nt}$		A	$A_{nt}$	,	
Iki išlaikymo kameros	23 300	7690	$67 \pm 5$	_	_	_	
Po išlaikymo kameros	4 530	910	$80 \pm 5$	80	40	$50 \pm 10$	
Iki aktyvumo mažinimo įrenginio	80	30	63 ± 5	150	60	$60 \pm 10$	
Po aktyvumo mažinimo įrenginio	750	220	71 ± 5	120	40	$67 \pm 15$	

<sup>60</sup>Co dalis tirpioje aerozolio dalelių, surinktų Ignalinos AE veikiančio bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos ore, frakcijoje buvo intervale nuo 50 iki 67 %. <sup>137</sup>Cs dalis tirpioje aerozolio dalelių, surinktų Ignalinos AE veikiančio bloko reaktoriaus ventiliacinės sistemos ore, frakcijoje buvo intervale nuo 67 iki 80 %. Gauti rezultatai artimi aerozolio dalelių, surinktų veikiančio 2 bloko reaktoriaus ventiliacinio kamino, išplovimo rezultatams (21 lentelė).

Akivaizdumo dėlei, aerozolio dalelių, <sup>60</sup>Co nešėjų, surinktų Ignalinos AE ventiliaciniame ore ir pažemio ore, išplovimo tyrimų rezultatai pavaizduoti grafiškai 41 pav.



41 pav. <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ir <sup>60</sup>Co dalies neišplautoje aerozolio dalelių frakcijoje aktyvumo koncentracijos Ignalinos AE veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore po aktyvumo mažinimo įrenginio (*iki ventiliacinio kamino*) ir ventiliacinio kamino ore (*ventiliacinis kaminas*), neveikiančio reaktoriaus ventiliacinio kamino ore bei pažemio ore (*aplinka*). Dešinėje skalėje pateikti <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore santykiai su <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracija ore išplautoje aerozolio dalelių frakcijoje, W (%).

Šie rezultatai rodo, kad Ignalinos AE veikiančio reaktoriaus ventiliacinėje sistemoje išplautoje aerozolio dalelių frakcijoje randama nuo 50 iki 80 % radionuklidų, kas patvirtina prielaidas apie aukščiau minėtą aerozolio dalelių augimą persotintuose vandens garuose po turbinos.

Po aktyvumo mažinimo įrenginio visų radionuklidų aktyvumo koncentracijos ženkliai sumažėja, bet išlieka nekintantis radionuklidų aktyvumų santykis išplautoje aerozolio dalelių frakcijoje ir pradiniame bandinyje (22 lentelė).

Aerozolio dalelių susidarymo atominėse elektrinėse branduolinio rektoriaus dujų atskyrimo nuo kondensuoto vandens procese galima įžvelgti panašumą su aerozolio dalelių susidarymo epizodais aplinkoje. Tikriausiai, aerozolio dalelių augimo epizode virš Suomijos miškų [99] ir veikiančio Ignalinos AE reaktoriaus ventiliaciniame ore procesų panašumas yra tai, kad augimo priežastis yra vandens molekulių absorbcija ant susidariusių iš dujinės fazės dalelių.

#### 5.3 Tirpių ir netirpių aerozolio dalelių pernešimas pažemio ore

<sup>60</sup>Co dalis išplautoje aerozolio dalelių, surinktų veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore, frakcijoje buvo 67 %, o surinktų pažemio ore buvo 24 %. Tikriausiai, tirpios ir netirpios aerozolio dalelės, <sup>60</sup>Co nešėjos, iš ventiliacinio kamino patekusios į pažemio orą, kur vandens garų koncentracija retai siekia sotiems garams būdingas reikšmes, sąveikauja su atmosferos aerozolio dalelėmis bei kitomis priemaišomis ore ir patiria savybių transformacijas. Dėl to <sup>60</sup>Co dalis išplautoje pažemio oro aerozolio dalelių frakcijoje sumažėja ir pasiekia reikšmes, būdingas kontinentinei oro masei.

Aerozolio dalelės, <sup>60</sup>Co nešėjos, gali būti laikomos pasyviomis priemaišomis pažemio oro turbulentiniuose srautuose, ir pusiau empirinę Gauso lygtį (Pasquill-Gifford metodo dalis) [142, 143], aprašančią priemaišų pernešimą AE fakele, galime papildyti koeficientu, įvertinančiu aerozolio dalelių, <sup>60</sup>Co nešėjų, savybių kitimą oro masių judėjimo trajektorijoje nuo radionuklido emisijos šaltinio iki matavimo taško radionuklido emisijos šaltinio poveikio zonoje.

<sup>60</sup>Co dalies tirpioje aerozolio dalelių frakcijoje kitimą laiko bėgyje, kai pažemio ore vyksta pernešimas iš AE kamino iki FI stoties, aprašome eksponentine funkcija  $F_R$ , analogiška funkcijai, aprašančiai radionuklidų skilimą, su pastoviu laipsnio rodikliu, kurį įvertiname iš eksperimentinių rezultatų, skaičiuodami pernešimo laiką proporcingą atstumo tarp AE kamino ir stoties *x*, m, bei vėjo greičio *u*, m/s, santykiui:

$$F_R = \exp{-\frac{k_t x}{u}},\tag{19}$$

čia  $k_t - {}^{60}$ Co dalies išplautoje aerozolio dalelių frakcijoje kitimo greičio konstanta (1/s).

Eksponentinę funkciją  $F_R$  galima laikyti funkcija, aprašančia tirpių aerozolio dalelių, <sup>60</sup>Co nešėjų, pašalinimą iš Ignalinos AE fakelo.

Tikslu įvertinti <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore pasiskirstymą tirpioje ir netirpioje aerozolio dalelių frakcijose, pusiau empirinę lygtį (Pasquill-Gifford metodo dalis) papildome koeficientu  $F_R$ :

$$C_{(x,y,z)} = Q \frac{F_x F_R}{2\pi\sigma_y \sigma_z u} \exp\left[-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right] \left\{ \exp\left[-\frac{(z-h_{ef})^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+h_{ef})^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\},$$
(20)

čia Q yra radionuklido emisijos greitis iš Ignalinos AE ventiliacinio kamino, Bq/s,  $\sigma_y$ ir  $\sigma_z$  yra standartiniai horizontalus ir vertikalus priemaišų pernešimo ore nuokrypiai, m,  $h_{ef}$  yra efektyvus išlėkų aukštis, m, u yra vėjo greitis, m/s,  $F_x$  yra koeficientas, įvertinantis radionuklido pasišalinimą iš fakelo dėl skilimo,  $F_R$  yra koeficientas, aprašantis <sup>60</sup>Co dalies mažėjimą tirpioje aerozolio dalelių frakcijoje Ignalinos AE fakele.

Lygtis (20) užrašyta stacionariems atvejams, kai radionuklido emisija ir meteorologinės sąlygos (svarbiausia – vėjo kryptis) nesikeičia kelių valandų bėgyje. Radionuklidų aktyvumo koncentracijų skaičiavimus atlikome koordinačių sistemoje, kai *x* ašis susiejama su vėjo kryptimi, *y* ašis yra statmena vėjo krypčiai, *z* ašis yra statmena žemės paviršiui. Emisijos šaltinio padėties ant žemės paviršiaus taškas (vidurys tarp Ignalinos AE 1 ir 2 blokų) patalpinamas koordinačių pradžioje ( $x_0$ ,  $y_0$ ,  $z_0$ ). Matavimo stoties (FI stotis) padėties taškas aprašomas koordinačių rinkiniu ( $x_1$ , 0, 1), kur  $x_1 = 3500$  m. Radionuklido aktyvumo koncentracijos pažemio ore,  $C_{(3500,y,z)}$ , plokštumoje, statmenoje vėjo krypčiai FI stotyje, skaičiuojamos iki aukščio virš žemės paviršiaus kitimo intervale nuo 0 iki 300 m su 10 m žingsniu ir 20 m žingsniu statmenai vėjo krypčiai intervale nuo -200 iki 200 m.

Nagrinėjamu oro aerozolio dalelių bandinio ėmimo laikotarpiu 2007.06.06-18, iš Ignalinos AE kamino išlėkusios aerozolio dalelės, <sup>60</sup>Co nešėjos, galėjo būti pernešamos į FI stotį birželio 7-9 d. (pernašos trukmė 60 val.) ir birželio 10-11 d. (pernašos trukmė 30 val.). <sup>60</sup>Co emisijos greitis iš Ignalinos AE 1 ir 2 reaktoriaus blokų buvo 1,0 ir 1,8 Bq/s, atitinkamai. Pažemio oro aerozolio bandinio ėmimo laikotarpiu priemaišos dispersijos ore standartiniai vertikalūs nuokrypiai buvo vertinami, nustatant atmosferos stabilumo klasę iš lentelių pagal temperatūros 2 m ir 30 m aukščiuose skirtumo ir vėjo greičio santykį ir kito paros bėgyje 30-420 m intervale, standartiniai horizontalūs nuokrypiai,  $\sigma_y$ , kito 80-440 m intervale. Vidutinis vėjo greitis *u*, regione buvo apie 2 m/s.

<sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore pasiskirstymo skaičiavimai pagal (20) lygtį buvo atliekami MathCad programos aplinkoje naudojant HYSPLIT modelio meteorologinių duomenų archyvo duomenis su reikšmėmis kas tris valandas. Buvo skaičiuojamas <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore pasiskirstymas *y*,*z* plokštumoje FI stoties atstume nuo elektrinės, kai neatsižvelgiama į pasiskirstymą tarp aerozolio dalelių frakcijų (koeficientas  $F_R$  neįvertinamas) ir kai radionuklidas yra tirpioje aerozolio dalelių frakcijoje (koeficientas  $F_R$  vertinamas). 42 pav. trimačiame grafike pateikti skaičiavimų rezultatai, atlikti 2007.06.06-18 aerozolio dalelių bandinio paėmimo laikotarpiui.



42 pav. <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore pasiskirstymas *y*,*z* plokštumoje FI stoties atstumu *x*=3500 m nuo elektrinės: 1 – neatsižvelgiama į pasiskirstymą tarp aerozolio dalelių frakcijų (koeficiento  $F_R$  kitimas nevertintas), 2 – kai radionuklidas yra tirpioje aerozolio dalelių frakcijoje (koeficiento  $F_R$  kitimas vertintas).

Didžiausia <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracija ore kamino aukštyje virš FI stoties z = 150 m (x = 3500, y = 0) buvo  $1,5 \times 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ , o pažemio oro aerozolio dalelių bandinio ėmimo taške (x = 3500 m, y = 0, z = 1) buvo  $1,7 \times 10^{-6} \text{ Bq/m}^3$ .

Nagrinėjamu bandinio ėmimo laikotarpiu funkcija  $F_R$  buvo įvertinta radionuklido dalies tirpioje aerozolio dalelių, surinktų AE kaminuose ir pažemio ore, frakcijose skirtumui lygiam 0,25, o parametras  $k_t$ , įvertinant pernešimą 3,5 km atstumu su vėjo greičiu 2 m/s, gautas lygus 0,8×10<sup>-3</sup> 1/s.

Kaip buvo minėta, skaičiavimams buvo naudoti HYSPLIT modelio archyviniai meteorologiniai duomenys. Tačiau HYSPLIT modelis įgalina atlikti ir radionuklido dalies tirpioje ir netirpioje aerozolio dalelių frakcijų sumos dispersijos pažemio ore skaičiavimus. Buvo skaičiuoti atvejai, kai visam laikotarpiui <sup>60</sup>Co koncentracija išlėkose buvo pastovi, oro pernašos kryptis sutapo su kryptimi nuo elektrinės į matavimo stotį. Išlėkų aukštis 150 metrų, koncentracijų vertės pažemio ore vidurkintos valandai.

Radionuklido aktyvumo koncentracijų ore skaičiavimo rezultatai, taikant priemaišos pasiskirstymo ore ir iškritų globalų HYSPLIT modelį pateikti 43 pav.





43 pav. <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijų pažemio ore, Bq/m<sup>3</sup>, pasiskirstymas Ignalinos AE regione 2007.06.7-9 d. (1) ir 06.11-12 (2).  $\bigstar$  - Ignalinos AE, • - FI stotis, • - didžiausia radionuklido aktyvumo koncentracijos ore vertė (1,8×10<sup>-7</sup> Bq/m<sup>3</sup> ir 1,6×10<sup>-7</sup> Bq/m<sup>3</sup>, atitinkamai). Apskritimu pavaizduota IAE 30 km stebėjimo zona.

<sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracija pažemio ore Fizikos instituto stotyje 2007.06. 6-18, apskaičiuota taikant Pasquill-Gifford metodą (~1.7 μBq/m<sup>3</sup>) ir HYSPLIT modelį (~0,17 μBq/m<sup>3</sup>) patenkinamai sutinka su eksperimentiniu <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore rezultatu (0,5 ± 0,1 μBq/m<sup>3</sup>).

## SKYRIAUS IŠVADOS

1.  $^{137}$ Cs ir  $^{60}$ Co dalis išplautoje aerozolio dalelių, surinktų veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore, frakcijoje buvo 74 ± 22 % ir 67 ± 17 %, atitinkamai, o neveikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore  $-24 \pm 5$  % ir  $20 \pm 5$  %, atitinkamai.

2. <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore ir išplautoje aerozolio dalelių frakcijoje su kintančiu laike ir erdvėje santykiu pasiskirstymas AE fakele apskaičiuotas, papildant pusiau empirinę Pasquill-Gifford lygtį koeficientu, aprašančiu tirpių aerozolio dalelių, <sup>60</sup>Co nešėjų, pašalinimą.

#### **DARBO REZULTATAI**

1. Metinių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore kaita regione 1988-2008 m. aprašyta eksponentine funkcija su mažėjimo pusiau trukme  $T_{1/2} \cong 30$  metų.

 Vidutinė <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos iškritose Ignalinos AE aplinkoje 2005-2008 m. reikšmė gauta lygi 1,1 Bq/(m<sup>2</sup> mėnuo).

3. Šuoliški <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore padidėjimai koreliuoja su oro masių pernašos trajektorijomis, kertančiomis teritorijas, užterštas po avarijos Černobylio AE iki šiol liekančias <sup>137</sup>Cs patekimo į orą šaltiniu.

4. Vieno kontūro atominės elektrinės aušinamame vandens gare inertinių dujų radionuklidai, skildami virsta šarminių ir žemės šarminių metalų elementais, tampa aerozolio gamybos centrais, absorbuoja vandens molekules ir per keliolika minučių ant jų, kaip kondensacijos branduolių, išauga radioaktyvios aerozolio dalelės.

5.  $^{137}$ Cs ir  $^{60}$ Co dalis išplautoje aerozolio dalelių, surinktų veikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore, frakcijoje buvo 74 ± 22 % ir 67 ± 17 %, atitinkamai, o neveikiančio reaktoriaus ventiliaciniame ore  $-24 \pm 5$  % ir  $20 \pm 5$  %, atitinkamai.

6. <sup>60</sup>Co aktyvumo koncentracijos ore ir išplautoje aerozolio dalelių frakcijoje su kintančiu laike ir erdvėje santykiu pasiskirstymas AE fakele apskaičiuotas, papildant pusiau empirinę Pasquill-Gifford lygtį koeficientu, aprašančiu tirpių aerozolio dalelių, <sup>60</sup>Co nešėjų, pašalinimą.
## 1 priedas. <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimų Ignalinos AE regione 2005-2006 metais analizė

Pateikiama <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimų Ignalinos AE regione 2005-2006 metais analizė. Laikotarpiais, kai registruoti <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimai, buvo skaičiuojamos 72 valandų (vidutinio sinoptinio periodo) trukmės atgalinės oro masių pernašos trajektorijos (trijuose aukščiuose: 100, 500 ir 1000 m) link FI stoties kas 6 valandas.

## 2005 metai

2005 metais <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija ore 6,9  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> buvo stebėta 2005.02.05 - 02.19 laikotarpiu Tai nebuvo šuoliškas koncentracijos padidėjimas. Didesnės nei globalinį pasiskirstymą atspindinčios reikšmės buvo stebėtos visą vasario mėnesį. Atlikus atgalinių oro masių judėjimo trajektorijų skaičiavimus, nustatyta, kad 2005 m. vasario mėn. pirmos pusės oro masių pernašos trajektorijos kirto potencialų stebimo radionuklido <sup>137</sup>Cs šaltinį – Ukrainos pasienyje veikusios Černobylio AE užterštus plotus (44 pav.).



44 pav. Į Ignalinos rajoną atneštų oro masių judėjimo trajektorijos, pasiekusios matavimo stotį 2005.02.05 9:00 (1) ir 2005.02.06 9:00 (2).

<sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore padidėjimas ilgesnį laiką buvo stebimas ir 2005 metų spalio mėnesį. Laikotarpiu nuo 2005.10.02 iki 2005.11.05 oro masių judėjimo trajektorijos beveik visą laiką kirto potencialų <sup>137</sup>Cs šaltinį – po avarijos Černobylio AE labiausiai užterštus regionus (45 pav.). Pažemio oro pernašos trajektorijos keletą atvejų ėjo tiesiai per ketvirtą Černobylio AE bloką uždengtą sarkofagu.

Tikriausiai, atskirais laikotarpiais, esant mažiems vėjų greičiams iš rytų į regioną atkeliavusios oro masės ištisas valandas pasilikdavo regione. Meteorologinės sąlygos buvo palankios padidintų <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore susidarymui.

<sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos pažemio ore padidėjimo laikotarpiu 2005 m. spalio 30 d. – lapkričio 5 d. virš gretimų teritorijų įsivyravo galingas anticiklonas. Tikriausiai, anticikloninės sąlygos galėjo sudaryti palankias sąlygas <sup>137</sup>Cs pernašai iš radionuklidu užterštų teritorijų. Taip būtų galima paaiškinti kitus <sup>137</sup>Cs šuoliškus aktyvumo koncentracijų ore padidėjimus rudenį ir žiemą.









45 pav. Į Ignalinos rajoną atneštų oro masių judėjimo trajektorijos, pasiekusios matavimo stotį 2005.10.06, 10. 08-13 ir 11.01-06.

## 2006 metai

2006 metais užregistruotam <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijos padidėjimui iki 8.9  $\mu$ Bq/m<sup>3</sup> 2005.12.31 - 2006.01.07 paaiškinti atlikta virš 10 atgalinių oro masių trajektorijų skaičiavimų (46 pav., 1-5).

Įdomi meteorologinė situacija susiklostė jubiliejinio bandinio Nr. 3000 paėmimo laikotarpiu 2006.04.15-23 (46 pav., 6-11). Šiuo laikotarpiu buvo užregistruota maksimali per pastaruosius metus <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracija ore 13,5 mBq/m<sup>3</sup> ir viena didesnių <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų per stebėjimo laikotarpį 10,0 μBq/m<sup>3</sup>. Šio laikotarpio pradžioje vyravo vakarų krypčių oro masių pernaša, o pabaigoje buvo stebima pernašą iš šiaurės pagal meridianą su oro masių nusileidimu iš didesnio aukščio į pažemio sluoksnį. Tai lėmė maksimalių <sup>7</sup>Be aktyvumo koncentracijų pažemio ore formavimąsi. Oro masių kelyje į bandinių paėmimo stotį patenka Leningrado ir Ignalinos atominės elektrinės - potencialūs <sup>137</sup>Cs šaltiniai. Meridianinė pernaša iš šiaurės su oro masių nusileidimu iš didesnių aukščių yra palanki padidintų <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų ore susidarymui. Toks oro masių pernašos pobūdis susiformuoja bent vieną kartą beveik kasmet.

Tačiau atgalinių oro masių judėjimo trajektorijų analizės pagrindu susieti <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų pažemio ore padidėjimą 2006.04.15-23 su radionuklido pernaša su oro masėmis iš avarijos Černobylio AE užterštų teritorijų griežtai

nepavyksta. Šis atvejis gali būti susijęs ir su artimąja radionuklido pernaša dėl masinių pievų ir miškų gaisrų Lietuvoje. 2006.04.15-23 Lietuvoje tada išdegė 8120 ha bendras pievų ir miškų plotas, iš jų vien tik Utenos ir Vilniaus rajonuose išdegė 4100 ha.

2006.11.18-24 užregistruota <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija ore 7,7 μBq/m<sup>3</sup> (46 pav., 12-18). Šiuo laikotarpiu registruota <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracija vertinta, kaip šuoliškas <sup>137</sup>Cs aktyvumo koncentracijų padidėjimas, ir atlikti nešamų į Ignalinos rajoną oro masių trajektorijų skaičiavimai. Kaip matyti iš paveikslų praktiškai per visą bandinių rinkimo laikotarpį oro masių pernašos pobūdis beveik nekito ir buvo palankus <sup>137</sup>Cs atnešimui iš rajonų, užterštų po Černobylio avarijos. Tikėtina, kad registruojamas radionuklidas į filtrą pateko iš <sup>137</sup>Cs užterštų rajonų po antrinio jo patekimo į orą.











46 pav. Į Ignalinos rajoną atneštų oro masių judėjimo trajektorijos, pasiekusios matavimo stotį 2005.12.31-2006.01.07, 2006.02.04, 2006.04.15-23, 2006.11.18-24.

## LITERATŪRA

- [1] V. Valkovic. Radioactivity in the Environment. Elsevier, 681 p. (2000).
- [2] B. Styra. Branduolinės meteorologijos klausimai. Vilnius: LTSR Mokslų Akademija, 418 p. (1959).
- [3] Nuclear geophysics and its application. Technical reports series 393. International Atomic Energy Agency, 200 p. (1999).
- [4] M. Eisenbud, T. Gesell. Environmental Radioactivity. From Natural, Industrial, and Military Sources. Elsevier, 656 p. (1997).
- [5] L. Morawska. From nanoparticles to large expiratory droplets in indoor air. European Aerosol Conference, 2007.09.09-14, Salzburg. Plenary lecture (2007).
- [6] P. Murry. Nucleation and growth of atmospheric particles: Processes and atmospheric effect. European Aerosol Conference, 2008.08.24-29, Thessaloniki. Plenary lecture (2008).
- [7] Л. Ивлев. Химический состав и структура атмосферных аэрозолей. Ленинград: Издательство Ленинградского университета, 368 р. (1982).
- [8] S. Pryor, M. Gallacher, H. Sievering, S. Larsen, R. Barthelmie, F. Birsan, E. Nemitz, J. Rinne, M. Kulmala, T. Gronholm, R. Taipale, T. Vesala. A review of measurement and modelling results of particle atmosphere-surface exchange. Tellus 60B (1), 42-75 (2008).
- [9] А. Гиргждис, В. Улявичюс, А. Юозайтис. Исследование изменений дисперсности атмосферных аэрозолей. Физика атмосферы 12, 112-120 (1988).
- [10] M. Kulmala, L. Pirjola, J. Makela. Stable sulphate clusters as a source of new atmospheric particles. Nature, 66-69 (2000).
- [11] K. Šopauskas, B. Styra, E. Vėbra, B. Vėbrienė, S. Šalavėjus, D. Šopauskienė. Apie dirbtinai įvestų į debesį radioaktyvių izotopų išsiplovimo pobūdį antžeminių stebėjimo stočių duomenimis. Atmosferos valymosi nuo radioaktyvių izotopų procesų tyrimai. Vilnius: Mintis, 332-343 (1968).
- [12] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. Vol. 1. Sources. Annex C. Exposures from man-made sources of radiation, 134 p. (2000).
- [13] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. Vol. 2. Effects. Annex J. Exposures and effects of the Chernobyl accident, 115 p. (2000).
- [14] Р. Ясюленис, Р. Кренявичюс, Л. Милошене, А. Серапинас. О распределении концентраций <sup>137</sup>Cs и <sup>7</sup>Be в атмосферном воздухе в районе строящейся Игналинской АЭС. Проблемы исследования загрязнения атмосферы Физика атмосферы 7, 61-65 (1981).
- [15] R. Jasiulionis. Radionuklidų srautų Ignalinos AE aplinkoje įvertinimas. Lietuvos valstybinės mokslo programos "Atominė energetika ir aplinka" mokslinių ataskaitų rinkinys. Vilnius, 1-40 (1997).
- [16] R. Jasiulionis, I. Savickaitė. Radionuclides in ground-level air and deposits near the Ignalina NPP. Nukleonika 46 (4), 183-187 (2001).
- [17] E. Garger, A. Sazhenyuk, A. Odintzov, H. Paretzke, P. Roth, J. Tschiersch. Solubility of airborne radioactive fuel particles from the Chernobyl reactor and implication to dose. Radiation and Environmental Biophysics 43, 43-49 (2004).

- [18] NuDat 2.4. Nuclear structure and decay data database. http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/index.jsp.
- [19] Ю. Израэль. Мирные ядерные взрывы и окружающая среда. Ленинград: Гидрометеоиздат, 135 р. (1974).
- [20] Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization. <u>http://www.ctbto.org/</u>.
- [21] J Kang, P. Hayes. Technical Analysis of DPRK Nuclear Test. Nautilus institute <u>http://www.nautilus.org/fora/security/0689HayesKang.html</u> (2006).
- [22] А. Марей, Р. Бархударов, В. Книжников, Б. Борисов, Э. Петухов, Н. Новикова. Глобальные выпадения продуктов ядерных взрывов как фактор облучения человека. Москва: Атомиздат, 188 р. (1980).
- [23] Л. Гедеонов, М. Жилкина, З. Гритченко, В. Флегмонтов. К вопросу о формах нахождения радионуклидов в атмосферных осадках. Исследование процессов самоочищения атмосферы от радиоактивных изотопов Вильнюс: Минтис, 181-190 (1968).
- [24] B. Hicks. Nucleation and the wet removal of fallout. Journal of Applied Meteorology 5, 169-174 (1966).
- [25] F. Raes, R Dingenen, E. Vignati, J. Wilson, J. Putaud, J. Seinfeld, P. Adams. Formation and cycling of aerosols in the global troposphere. Atmospheric Environment 34, 4215-4240 (2000).
- [26] В. Луянас, П. Зинкявичюс. Высота тропопаузы и временной ход концентраций космогенных изотопов в тропосфере. Радиоактивность атмосферы и гидросферы. Радиоактивные трассеры. Физика атмосеры 3 (1977).
- [27] Ю. Израэль. Радиоактивное загрязнение природных сред в результате аварии на Чернобыльской атомной станции. Комтехпринт, 28 р. (2006).
- [28] Р. Ясюленис, Г. Шнеа, А. Гудялис, Л. Милошене. Радиационное состояние атмосферы на северо-востоке Литвы после аварии на Чернобыльской АЭС. Физика атмосферы 15, 54-64 (1991).
- [29] Y. Hatano, N. Hatano, H. Amano, T. Ueno, A. Sukhorukin, S. Kazakov. Aerosol migration near Chernobyl: long-term data and modeling. Atmospheric Environment 32 (14/15), 2587-2594 (1998).
- [30] A. Borovoi, A. Gagarinskii. Emission of radionuclides from the destroyed unit of the Chernobyl nuclear power plant. Atomic Energy 90 (2), 153-161 (2001).
- [31] The French-German Initiative for Chernobyl. Study of the radiological consequences. Moeker-Merkur Druck GmbH, 112 p. (2005).
- [32] Э. Пазухин. Горение графита реактора 4-го энергоблока во время активной стадии аварии на Чернобыльской АЭС. Возможный вариант сценария. Радиохимия 50 (2), 188-192 (2008).
- [33] Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation. Twenty years of experience. IAEA radiological assessment report series. International Atomic Energy Agency, 180 p. (2006).
- [34] N. Talerko. Mesoscale modelling of radioactive contamination formation in Ukraine caused by the Chernobyl accident. Journal of Environmental Radioactivity 78 (3), 311-329 (2005).
- [35] The French-German Initiative for Chernobyl. Safety state of the Sarcophagus. Moeker-Merkur Druck GmbH, 70 p. (2005).
- [36] E. Kuzmina. Nuclear fuel and the characteristics of aerosol formation in the object "Cover". Atomic Energy 82 (1), 38-43 (1997).

- [37] G. Pretzch. Radiological hazards at the Chernobyl Shelter Site (7c13). Proceedings in 11th International Congress of the International Radiation Protection Association. May 23-28, 2008, Madrid. (2004).
- [40] B. Ogorodnikov, A. Budyka. Monitoring radioactive aerosols in the object "Cover". Atomic Energy 92 (6), 1016-1020 (2001).
- [41] B. Ogorodnikov. Origin and components of radioactive aerosols on the cover site at the Chernobyl nuclear power plant. Atomic Energy 93 (5), 917-922 (2002).
- [42] B. Ogorodnikov, A. Budyka, N. Pavliuchenko. Observation of radioactive aerosol emissions from the Sarcophagus at the Chernobyl cuclear power plant. Atomic Energy 96 (3), 202-213 (2004).
- [43] E. Garger, J. Tschiersch. Chernobyl aerosol in 1986-2004. The International Conference "Twenty Years after Chornobyl Accident. Future outlook." April 24-26, 2006, Kyiv (2006).
- [44] B. Ogorodnikov, A. Budyka, E. Pazukhin, A. Krasnov. Aerosol emissions from the detroyed power-generating unit of the Chernobyl nuclear power plant in 1986 and 2003-2005. Atomic Energy 100 (4), 276-282 (2006).
- [45] A. Budyka, B. Ogorodnikov. Radioactive aerosols of Chernobyl origin in 1986-2007. European Aerosol Conference, 2008.08.24-29, Thessaloniki. Poster session T07A020P (2008).
- [46] The International nuclear event scale. International Atomic Energy Agency. <u>http://www-ns.iaea.org/tech-areas/emergency/ines.htm</u> (2008).
- [47] International Atomic Energy Agency. Nuclear power reactors in the world. Vienna: IAEA, 77 p. (2008).
- [48] G. Rosner, R. Winkler. Temporal variation of post-Chernobyl <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>238</sup>Pu and <sup>239,240</sup>Pu concentrations in air and depositions to ground in South Germany form 1986 to 1998. Science of the Total Environment 273 (1-3), 11-25 (2001).
- [49] Y. Hatano, N. Hatano. Formula for the resuspension factor and estimation of the date of surface contamination. Atmospheric Environment 37, 3475-3480 (2003).
- [50] Б. Годун, С. Киреев, С. Обризан. К вопросу о минимизации процессов загрязнения приземного слоя атмосферы зоны Отчуждения основными источниками радиоактивных аэрозолей. Международная конференция "Двадцать лет Чернобыльской катастрофы. Взгляд в будущее". Апрель 24-26, 2006, Киев. (2006).
- [51] Б. Годун, В. Деревец, С. Киреев, С. Обризан. Влияние опасных природных явлений и процессов в зоне отчуждения на радиоактивное загрязнение окружающей среды. Международная конференция "Двадцать лет Чернобыльской катастрофы. Взгляд в будущее". Апрель 24-26, 2006, Киев. (2006).
- [52] В Чернобыльской зоне возник пожар. Сообщение информационного агенства РБК-Украина. 2007.03.22 (2007).
- [53] В. Холландер, Е. Гаргер. Загрязнение поверхностей за счет ветрового подъема радиоактивных аэрозолей. Заключительный отчет. (1996).
- [54] V. Kashparov, S. Lundin, A. Kadygrib, V. Protsak, S Levtchuk, V. Yoschenko, V. Kashpur, N. Talerko. Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters. Journal of Environmental Radioactivity 51, 281-298 (2000).

- [55] V. Yoschenko, V. Kashparov, Protsak. V, S. Lundin, S. Levchuk, A. Kadygrib, S. Zvarich, Y. Khomutinin, I. Maloshtan, V. Lanshin, M. M.V. Kovtun, J. Tschiersch. Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part I. Fire experiments. Journal of Environmental Radioactivity 86, 143-163 (2006).
- [56] В. Шевчук, В. Гурачевский. 20 лет после Чернобыльской катастрофы: последствия в Республике Беларусь и их преодоление. Национальный доклад. Комитет по проблемам последствий катастрофы на Чернобыльской АЭС при Совете Министров Республики Беларусь, 112 р. (2006).
- [57] Priešgaisrinės apsaugos ir gelbėjimo departamentas prie VRM. <u>http://www.vpgt.lt</u> (Meniu - Paros įvykiai). (2008).
- [58] C. Fogh, K. Andersson. Dynamic behaviour of <sup>137</sup>Cs contamination in trees of the Briansk region, Russia. The Science of the Total Environment 269, 105-115 (2001).
- [59] Н. Улюмджиева, Н. Чубарова, Б. Холбец. Оптические свойства атмосферного аэрозоля в период лесных пожаров 2002 г. в Московском регионе. Метеорология и гидрология 3, 45-52 (2005).
- [60] Э. Пазухин, А. Боровой, Б. Огородников. Лесной пожар как фактор перераспределения радионуклидов чернобыльского генезиса в окружающей среде. Радиохимия 46 (1), 93-96 (2004).
- [61] Н. Веремей, Ю. Довгалюк, Е. Станкова. Численное моделирование конвективных облаков, развивающихся в атмосфере при чрезвычайных ситуациях (взрыв, пожар). Физика атмосферы и океана 43 (6), 792-806 (2007).
- [62] H. Winkler, P. Formenti, D. Esterhuyse, R. Swap, G. Helas, H. Annegarn, M. Andreae. Evidence for large-scale transport of biomass burning aerosols from supplotometry at a remote South African site. Atmospheric Environment 42 (22), 5569-5578 (2008).
- [63] G. Lujanienė, V. Lujanas, V. Remeikis, A. Plukis, D. Jankūnaitė, B. Ogorodnikov. Speciation of radionuclides, their transformation and migration peculartities in the environment. Environmental and Chemical Physics 21 (3-4), 36-45 (1999).
- [64] G. Lujanienė, V. Aninkevičius, V. Lujanas. Artificial radionuclides in the atmosphere over Lithuania. Journal of Environmental Radioactivity 100, 108-119 (2009).
- [65] G. Lujanienė, V. Lujanas, A. Mikelinksienė. Forest fires as possible mechanism of redistribution of radioactive contamination. Sveikatos mokslai 3, 11-16 (2003).
- [66] J. Tschiersch, P. Frank, P. Roth, F. Wagenpfeil, J. Watterson. Enhanced airborne radioactivity during a pine pollen release episode Radiation and Environmental Biophysics 38 (2), 139-145 (1999).
- [67] G. Wotawa, M. Kalinowski. Evaluation of the operational IDC ATM products by comparing HYSPLIT BA, FA and OMEGA FOR during Level 4 events in Scandinavia. Proceedings of the Informal Workshop on Meteorological Modelling in Support of CTBT Verification. December 2000.12.4-6, Vienna. (2000).
- [68] А. Кононович, Н. Верховецкий, В. Пешков, С. Безменов. Влияние негерметичности ТВЭЛов на уровень загрязнения радионуклидами

технологических сред. Атомные электрические станции 10, 263-272 (1989).

- [69] Г. Дорошенко, А. Мигулин, С. Панченко. Модель формирования активности газовых продуктов деления в технологических средах АЭС с ядерным реактором РБМК-1000. Атомные электрические станции 11, 78-82 (1989).
- [70] В. Бадяев, Ю. Егоров, Е. Иванов, С. Казаков, А. Носков. Применение системного анализа в задачах радиационной безопасности АЭС. Радиационная безопасность и защита АЭС 11, 13-23 (1986).
- [71] P. Poškas, R. Zujus, A. Brazauskaitė, J. Kolesnikovas, G. Būdvytis. Ignalinos AE 1-ojo bloko priverstinės cirkuliacijos kontūro radiologinis įvertinimas. Energetika 4, 8-13 (2003).
- [72] K. Almenas, A. Kaliatka, E. Ušpuras. Ignalina RBMK-1500: A Source Book. Kaunas: Lithuanian Energy Institute. <u>http://www.lei.lt/insc/sourcebook/</u> (1998).
- [73] В. Петухов. Функционирование АЭС (на примере РБМК-1000). Справочник <u>http://www.reactors.narod.ru/rbmk/index.htm</u> (2008).
- [74] Техническое описание газовоздушных выбросов в атмосферу. ПТОэд-0517-4В1, 193 р. (2000).
- [75] Игналинская АЭС. Схема очистки газовых сбросов, Сх-164. ПТОэд-0921-60В10.
- [76] Ю. Егоров, А. Носков. Радиационная безопасность на АЭС. Библиотека эксплуатационника АЭС. Москва: Энергоатомиздат, 153 р. (1986).
- [77] В. Крицкий, Н. Ампелогова, Е. Евстигнеева, В. Крупенникова, Л. Кудряшов, М. Шведова, В. Лебедев, Ю. Гарусов, Е. Козлов, С. Ковалев. Анализ эффективности иодных угольных адсорберов в системах спецвентиляции АЭС с РБМК-1000. Атомная энергия 83 (1), 44-49 (1997).
- [78] P. Aleksandrov, V. Kalechits, E. Khozyasheva, P. Chechuev. Detecting small leaks in pipes in nuclear power plants by measuring aerosol parameters Atomic Energy 97 (3), 189-195 (2004).
- [79] А. Силантьев, И. Шкуратова. Обнаружение промышленных загрязнений почвы и атмосферных выпадений на фоне глобального загрязнения. Ленинград: Гидрометеоиздат, 136 р. (1983).
- [80] В. Бадяев, Ю. Егоров, С. Казаков. Охрана окружающей среды при эксплуатации АЭС. Библиотека эксплуатационника АЭС. Москва: Энергоатомиздат, 223 р. (1990).
- [81] Отчет по анализу безопасности 2 энергоблока ИАЭС. ПТОаб2-0345-102, 49 р. (2001).
- [82] Н. Гусев, М. Головко, О. Шамов, Л. Хамьянов, В. Шмелев, М. Альтшулер. Выброс радиоактивных газов и аэрозолей серийными атомными станциями. Атомная энергия 74 (4), 360-364 (1993).
- [83] IAE regiono 2006 m. radiacinio monitoringo ataskaita. ПТОот-0545-14 (2007).
- [84] Radionuklidų išmetimo į aplinką iš branduolinės energetikos objektų ribojimas ir radionuklidų išmetimo leidimų išdavimo bei radiologinio monitoringo tvarka. LAND 42-2001 (Žin., 2001, Nr. 13-415) (2001).
- [85] Ignalinos AE naujasis kietųjų atliekų tvarkymo ir saugojimo kompleksas. Poveikio aplinkai vertinimo ataskaita. Nukem Technologies GmbH-Lietuvos energetikos institutas, 413 p. (2008).

- [86] Panaudoto RBMK branduolinio kuro iš Ignalinos AE 1 ir 2 blokų laikinas saugojimas. Poveikio aplinkai vertinimo ataskaita. GNS Nukem Technologies GmbH Lietuvos energetikos institutas, 378 p. (2006).
- [87] J. Fachinger. Inventory of reactor graphite and treatment for diposal. RADWAP 2008, 2008.10.27-31, Julich Forschungszentrum, 25 p. (2008).
- [88] Trumpaamžių labai mažo aktyvumo radioaktyviųjų atliekų kapinynas. Lietuvos energetikos institutas. 292 p. (2008).
- [89] European Commission Joint Research Centre. Institute of Environment and Sustainability. Ispra, Italy. http://ies.jrc.ec.europa.eu/index.php?page=welcome-message (2008).
- [90] K. Makhonko, V. Kim. Dynamics of air, soil and water contamination by technogenic radionuclides of the territory of the USSR and Russia in 1954-2000. 92 (5), 421-429 (2002).
- [91] К. Махонько, В. Ким, Ю. Катрич, А. Волокитин. Сравнительное поведение трития и <sup>137</sup>Cs в атмосфере. Атомная энергия 85 (4), 313-318 (1998).
- [92] E. Krajny, L. Osrodka, M. Wojtylak, B. Michalik, J. Skowronek. Correlation between the meteorological conditions and the concentration of radionuclides in the ground layer of atmospheric air. Nukleonika 46 (4), 189-194 (2001).
- [93] A. Ioannidou, C. Papastefanou. Precipitation scavenging of <sup>7</sup>Be and <sup>137</sup>Cs radionuclides in air. Journal of Environmental Radioactivity 85, 121-136 (2006).
- [94] H. Wershofen, D. Arnold, T. Steinkopff. Measurement of plutonium isotopes in ground-level air in Northern-Germany – history and recent results. Nukleonika 46 (4), 155-159 (2001).
- [95] Y. Igarashi, M. Otsuji-Hatori, K. Hirose. Recent deposition of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs observed in Tsukuba. Journal of Environmental Radioactivity 31 (2), 157-169 (1996).
- [96] P. Rulik, I. Malatova, D. Drabova, M. Tomasek. Long Term Observation of <sup>137</sup>Cs, <sup>7</sup>Be, <sup>210</sup>Pb and <sup>40</sup>K in the Air Aerosol and <sup>85</sup>Kr in the Air in Prague, Czech Republic. Proceedings in 10th International Congress of the International Radiation Protection Association. May 14-19, 2000, Hiroshima. Presentation P-4a-233 (2000).
- [97] B. Svenningsson, H. Hansson, A. Wiedensohler, K Noone, J. Ogren, A. Hallberg, R. Colvile. Hygroscopic growth of aerosol particles and its influence on nucleation scavenging in cloud: Experimental results from Kleiner Feldberg. Journal of Atmospheric Chemistry 19 (1-2), 129-152 (1994).
- [98] C. Sprengard-eichel, M. Krijmers, I. Schijtz. Soluble and insoluble fractions of urban, continental and marine aerosol. Journal of Aerosol Science 29, supplement 1, 175-176 (1998).
- [99] M. Kulmala, G. Mordas, T. Petäjä, T. Grönholm, P. Aalto, H. Vehkamäki, A. Hienola, E. Herrmanna, M. Sipilä, I. Riipinen, H. Manninena, K. Hämeria, F. Stratmanna, M. Bildec, P. Winklerd, W. Birmili, P. Wagnerd. The condensation particle counter bartery (CPCB): a new tool to investigate the activation properties of nanoparticles. Journal of Aerosol Science 38 (3), 289-304 (2006).
- [100] В. Луянас, Г. Захарова. Некоторые особенности применения космогенных радионуклидов в качестве трассеров вертикального

движения воздушных масс. Примеси в атмосфере и их применение в качестве трассеров. Физика атмосферы 8, 7-11 (1983).

- [101] G. Lujanienė, B. Ogorodnikov, A. Budyka, V. Skitovich, V. Lujanas. An investigation of changes in radionuclide carrier properties. Journal of Environmental Radioactivity 35 (1), 71-90 (1997).
- [102] B. Lukšienė, R. Druteikienė. Study of plutonium migration and/or accumulation in soil undre field and laboratory conditions. Archives of industrial hygiene and toxicology 57, 17-22 (2006).
- [103] H. Timonen, S. Saarikoski, M. Aurela, K. Saarnio, E. Hillamo. Water-soluble organic carbon in urban aerosol: concentrations, size distributions and contribution to particulate matter. Boreal Environment Research 13, 335-346 (2008).
- [104] I. Savickaitė, R. Jasiulionis, Gudelis. A. Investigation of water-soluble and insoluble fractions of technigennic radionuclides near the source. Environmental and Chemical Physics 21 (3-4), 46-47 (1999).
- [105] E. Swietlicki. Aerosol Particle Deposition in the Human Respiratory Tract. AIRPOLIFE PhD Course "Air Pollution and Health". 2006.03.11, Kopenhagen, 78 p. (2006).
- [106] S. Varghese, S. Gangamma. Particle Deposition in Human Respiratory Tract: Effect of Water-Soluble Fraction. Aerosol and Air Quality Research 6 (4), 360-379 (2006).
- [107] J. Stather, E. Ansoborlo, A. Phillips. Long-term effects following intakes of radionuclides in particulate materials. Radiatiation protection dosimetry 92 (1-3), 201-207 (2000).
- [108] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. Vol. 1. Sources. Annex A: Dose assessment methodologies, 63 p. (2000).
- [109] E. Pechova. Application of PC-COSYMA code such a verification tool used in stage of NPP design 4-th COSYMA Users Group Meeting,1997.09.22, Prague, 23 p. (1997).
- [110] IAE regiono 2005 m. radiacinio monitoringo ataskaita. ПТОот-0545-13 (2006).
- [111] В. Матуолис, В. Поцюс, В. Лапейка. Особенности электрических свойств фильтров, применяемых для изучения атмосферных аэрозолей. Физика атмосферы 10, 99-104 (1985).
- [112] Материал фильтрующий ФПП-15-1,5 ТУ 6-16-2813-84. ООО Геосорб. <u>http://mtksorbent.ru/Categor1\_id/15/Default.htm</u> (2008).
- [113] Паспорт на фильтрующий материал ФПП-15-1,5. Esfiltehno (2005).
- [114] Aplinkos elementų užterštumo radionuklidais matavimas mėginių gama spektrinė analizė spektrometru, turinčiu puslaidininkinį detektorių. LAND 36-2000 (Žin., 2000, Nr. 101-3208; Žin., 2005, Nr. 59-2083) (2000).
- [115] Silena nuclear information processor user guide. Milan: Silena, 302 p. (1990).
- [116] Calibration and use of germanium spectrometers for the measurement of gamma-ray emission rates of radionuclides. American National Standard ANSI N42.14-1991. Institute of Electrical and Electronics Engineers, 72 p. (1991).
- [117] Р. Алексеев, Ю. Коровин. Руководство по вычислению и обработке результатов количественного анализа. Москва: Атомиздат, 72 р. (1972).
- [118] M. Makarewicz. Estimation of the uncertainty components associated with the measurement of radionuclides in air filters using gamma-ray spectrometers.

Accreditation and Quality Assurance: Journal for Quality, Comparability and Reliability in Chemical Measurement 10 (6), 269-276 (2005).

- [119] R. Draxler, G. Hess. An overview of the HYSPLIT4 modelling system for trajectories, dispersion and deposition. Australian Meteorology Magazine 47 (<u>http://www.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php</u>), 295-308 (1998).
- [120] D. Perkauskas. Evaluation of possible short-term air pollution transport from the Ignalina Nulear Power Plant. Environmental and Chemical Physics 21 (3-4), 83-88 (1999).
- [121] E. Swanberg, S. Hoffert. Using atmospheric <sup>137</sup>Cs measurements and HYSPLIT to confirm Chernobyl as a source of <sup>137</sup>Cs in Europe. 23rd seismic research review: worldwide monitoring of nuclear explosions 2001.10.2-5, Jackson Hole, USA, 64-70 (2001).
- [122] D. Robbins, J. Rynes, M. Eisenbrey. Radionuclide detection threshold in the Lop Nor region. Proceedings of the 24th Seismic Research Review. Nuclear Explosion Monitoring: Innovation and Integration. 2002.09.17-19, Florida, USA, 721-730 (2002).
- [123] G. Lammela, E. Bruggemann, T. Gnauk, K. Muller, C. Neususs, A. Rohrla. A new method to study aerosol source contributions along the tracks of air parcels and its application to the near-ground level aerosol chemical composition in central Europe. Aerosol Science 34, 1-25 (2003).
- [124] A. Kulan. Seasonal <sup>7</sup>Be and <sup>137</sup>Cs activities in surface air before and after the Chernobyl event. Journal of Environmental Radioactivity 90 (2), 140-150 (2006).
- [125] С. Бесчастнов. Влияние сдвигов ветра на поперечное рассеяние струи газоаэрозольной примеси на больших расстояниях от источника. Метеорология и гидрология 12, 39-45 (2003).
- [126] А. Курбацкий, Л. Курбацкая. Моделирование дисперсии пассивной примеси от непрерывного источника над городским островом тепла. Метеорология и гидрология 11, 5-15 (2003).
- [127] Р. Бригевич, Р. Кузнецов. Экстракционное отделение радиоактивного марганца от больших количеств железа. Радиохимия 10 (2), 243-246 (1968).
- [128] А. Новиков, Т. Закревская, Л. Веселаго. Разделение редкоземельных элементов и гафния соосаждением с гидроокисью железа. Радиохимия 10 (4), 485-493 (1968).
- [129] А. Новиков, Е. Щекотурова, Т. Закревская. Разделение и концентрирование <sup>91</sup>Y, <sup>95</sup>Zr, <sup>95</sup>Nb и <sup>99</sup>Mo соосаждением с гидратированными окислами железа (III) и марганца (IV). Радиохимия 13 (5), 728-733 (1971).
- [130] В. Плотников, Т. Таураева. Адсорбция цезия-137 гидроксидами металлов. Радиохимия 17 (3), 338-344 (1975).
- [131] В. Кузнецов, В. Генералова. Исследование сорбционных свойств гидроксидов железа, марганца, титана, алюминия и кремния по отношению к <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs. Радиохимия 42 (2), 154-157 (2000).
- [132] Р. Ясюленис, И. Савицкайте. Некоторые результаты изучения концентраций радионуклидов в воздухе и выпадениях в районе Игналинской АЭС после аварии на Чернобыльской АЭС. Физика атмосферы 14 (24-27) (1989).

- [133] Р. Ясюленис, И. Савицкайте, А. Гудялис. Изучение содержания радионуклидов в выпадениях в районе Игналинской АЭС. Физика атмосферы 15, 73-79 (1991).
- [134] L. Salickaite-Bunikiene, A. Bunikis. Bendrosios gelezies koncentracijos nustatymas su 1,10-fenantrolinu. Hidrochemijos praktikumas. Vilnius: VU leidykla, 150-154 (2006).
- [135] R. Jasiulionis, A. Gudelis, I. Savickaitė, D. Marčiulionienė. Radionuclides in the lake Drūkšiai-the cooling pond basin of the Ignalina NPP. Atmospheric Physics 17 (1), 25-29 (1995).
- [136] <u>http://www.leaching.net/leaching/process/</u>.
- [137] T. Kyotani, M. Iwatsuki. Determination of water and acid soluble components in atmospheric dust by inductively coupled plasma atomic emission spectrometry, ion chromatography and ion-selective method. Analytical Sciences 14, 741-748 (1998).
- [138] R. Cornelis, J. Caruso, H. Crews, K. Heumann. Handbook of Elemental Speciation - Techniques and Methodology. John Wiley and Sons, 670 p. (2003).
- [139] A. Tessier, P. Campbell, M. Bisson. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace materials. Analytical chemistry 51 (7), 844-850 (1979).
- [140] Privatus pranešimas R. Jasiulioniui (1989).
- [141] S. Rasool. Chemistry of the lower atmosphere, New York-London: Plenum press, 335 p. (1973).
- [142] Р. Кренявичюс, Р. Ясюленис. Изучение вертикальной турбулентной дифузии в районе Игналинской АЭС с использованием космогенного <sup>7</sup>Ве. Атмосфера физики 12, 86-93 (1988).
- [143] Е. Берлянд. Современные проблемы атмосферной диффузии и загрязнения атмосферы. Ленинград: Гидрометеоиздат, 448 р. (1975).