

**Instytut Fizyki Jądrowej
im. Henryka Niewodniczańskiego
Polskiej Akademii Nauk
ul. Radzikowskiego 152, 31-342 Kraków**

www.ifj.edu.pl/badania/publikacje
Kraków, Kwiecień 2019

**Identyfikacja i charakterystyka
izotopowych śladów awarii
elektrowni jądrowej
Fukushima Daiichi**

福島第一原子力発電所事故

Renata Kierepko

Rozprawa habilitacyjna

Wydano Nakładem Instytutu Fizyki Jądrowej im. Henryka Niewodniczańskiego
Polskiej Akademii Nauk
Kraków 2019

Recenzent: dr hab. Krzysztof Kozak
ISBN 978-83-63542-10-8

Spis treści

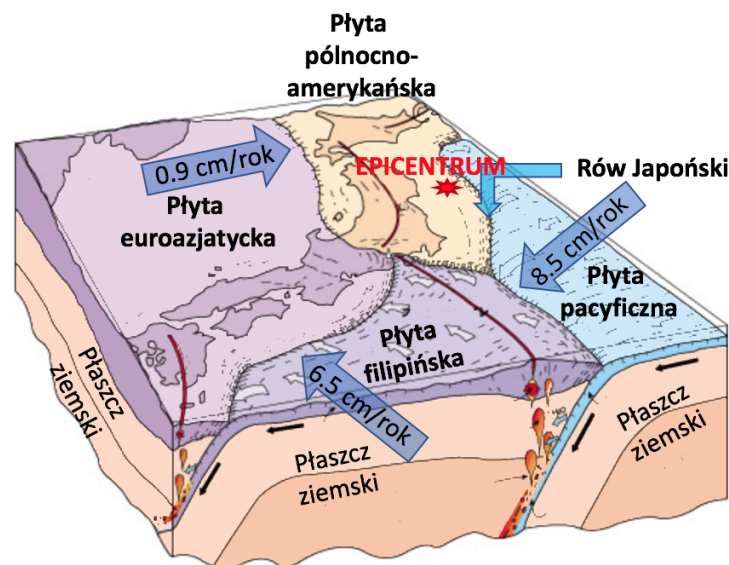
1	Wprowadzenie	1
1.1	Elektrownia jądrowa Fukushima Dai-ichi (FDNPP)	2
1.1.1	Położenie FDNPP	2
1.1.2	Charakterystyka FDNPP	2
1.1.3	Przebieg awarii jądrowej w FDNPP	5
1.1.4	Izotopy promieniotwórcze uwolnione do środowiska	7
1.1.5	Awaria w FDNPP na skali INES	10
1.2	Charakterystyka wybranych pierwiastków	14
1.2.1	Jod	14
1.2.2	Cez	15
1.2.3	Pluton	17
1.2.4	Ameryk	22
1.3	Źródła sztucznych izotopów promieniotwórczych w środowisku i ich identyfikacja	23
1.3.1	Antropogeniczne źródła izotopów promieniotwórczych	23
1.3.2	Identyfikacja źródeł promieniotwórczych	30
1.4	Charakterystyka wybranych metod spektrometrycznych	33
1.4.1	Spektrometria promieniowania alfa	33
1.4.2	Spektrometria promieniowania gamma	37
1.4.3	Spektrometria całego ciała	41
1.5	Cel pracy	45
2	Badania własne	47
2.1	Oznaczenia antropogenicznych izotopów promieniotwórczych w próbkach środowiskowych, pobranych na terenie prefektury Fukushima	47
2.1.1	Oznaczanie izotopów gamma - promieniotwórczych (^{134}Cs , ^{137}Cs)	50
2.1.2	Oznaczanie izotopów alfa - promieniotwórczych (Pu, U, ^{241}Am i ^{244}Cm)	54
2.1.3	Wyniki analiz alfa - i gamma - spektrometrycznych	66
2.2	Model n źródeł (nSM) - weryfikacja koegzystencji śladów różnych źródeł w próbkach środowiskowych	69
2.2.1	Zastosowanie modelu 2SM do serii wyników własnych	69
2.2.2	Zastosowanie modelu nSM do serii wyników literaturowych	71
2.3	Pomiary sztucznych izotopów promieniotwórczych w organizmach pacjentów przebywających w Japonii w 2011 r.	90
2.3.1	Kalibracje SCC w geometrii tarczycy i całego ciała	93
2.3.2	Wyniki pomiarów pacjentów w SCC	105
2.4	Identyfikacja izotopów promieniotwórczych we frakcji gazowej i aerozolowej powietrza w Krakowie w 2011 r.	107

2.4.1	Fracja gazowa przygruntowej warstwy powietrza	111
2.4.2	Fracja aerozolowa przygruntowej warstwy powietrza	115
2.4.3	Całkowity opad atmosferyczny	117
2.4.4	Wyniki analiz alfa - i gamma - spektrometrycznych	119
3	Dyskusja wyników badań	123
3.1	Izotopowe ślady awarii FDNPP na terenie Japonii	126
3.1.1	Skażenia promieniotwórcze wybranych elementów ekosystemu lądowego	127
3.1.2	Heterogeniczność izotopowych śladów FDNPP w próbkach środowi- skowych	152
3.2	Monitorowanie skażeń wewnętrznych - pomiary <i>in vivo</i>	159
3.3	Dalekozasięgowy transport izotopowych śladów awarii FDNPP w powietrzu . .	164
3.3.1	Izotopowe ślady awarii FDNPP w przyziemnej warstwie atmosfery w Krakowie	165
3.3.2	Izotopowe ślady awarii FDNPP w powietrzu nad Europą	172
4	Podsumowanie	180
	Podziękowania	182
	Lista wybranych skrótów i akronimów	182
	Bibliografia	184
	Spis rysunków	199
	Spis tabel	206
	Dodatki	209

Rozdział 1

Wprowadzenie

11 marca 2011 r. o godzinie 5:46 czasu UTC (14:46 JST) doszło do trzęsienia ziemi u wschodnich wybrzeży Japonii (The Great East Japan Earthquake). Japońska Agencja Meteorologiczna zlokalizowała hipocentrum zdarzenia 130 km na wschód od wybrzeża Sanriku (północno - wschodnia część wyspy Honsiū), na głębokości 24 km, na granicy dwóch płyt tektonicznych tj.: północnoamerykańskiej i pacyficzej, w pobliżu Rowu Japońskiego (rys.1.1) [1]. Trzęsienie to, o magnitudzie 9 (M 9) w skali Richtera [2], było jednym z pięciu największych zarejestrowanych w historii trzęsień ziemi na płycie pacyficzej (Chile 1960 (M 9.5), Chile 2010 (M 8.8), Alaska 1964 (M 9.2) i Sumatra 2004 (M 9.2)).



Rysunek 1.1: Rozmieszczenie płyt tektonicznych wokół Japonii [1].

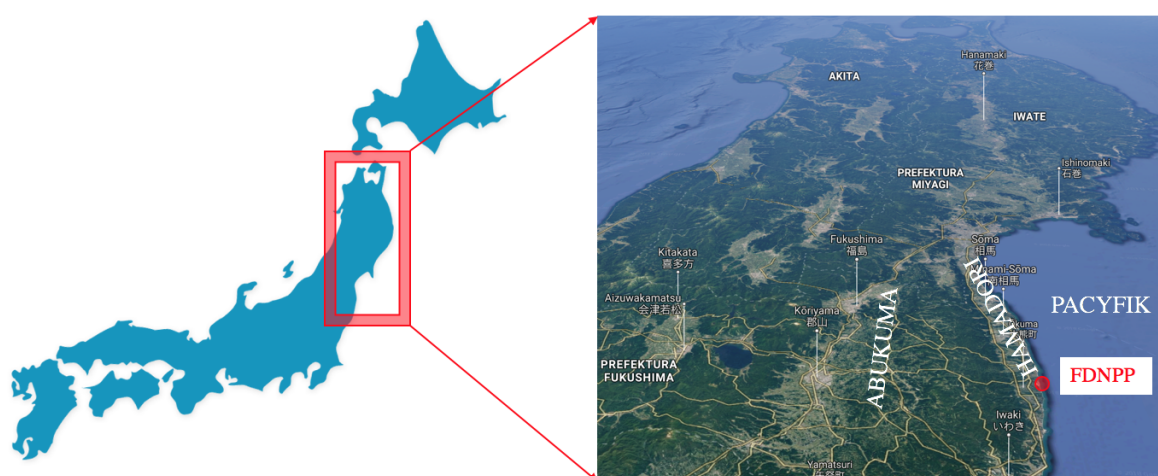
Jego następstwem było zaskakująco wysokie tsunami z maximum dochodzącym do 10 - 15 m (przewidywania 3 - 6 m) [1].

Zarówno trzęsienie ziemi jak i tsunami wywołały zniszczenia m.in. w elektrowni jądrowej Fukushima Dai-ichi (FDNPP), doprowadzając do jednej z największych awarii jądrowych w historii.

1.1 Elektrownia jądrowa Fukushima Dai-ichi (FDNPP)

1.1.1 Położenie FDNPP

FDNPP (GPS: 37°25'22"N 141°01'58"E) położona jest w regionie Tōhoku, na północno - wschodnim wybrzeżu największej wyspy Japonii, Honsiū (rys.1.2). Od strony zachodniej otacza ją Pacyfik zaś od strony wschodniej, wąska równina Hamadōri, ograniczona od zachodu terenem wyżynnym i górami Abukuma (najwyższy szczyt Ōtakine 1193 m n.p.m). Administracyjnie FDNPP usytuowana jest na terenie prefektury Fukushima (trzecia największa prefektura Japonii), na granicy miast Ōkuma i Futaba, w powiecie Futaba. FDNPP znajduje się w odległości ok. 220 km na północny wschód od Tōkiō, ok. 70 km na południowy wschód od stolicy prefektury Fukushima i ok. 160 km na południowy zachód od epicentrum trzęsienia ziemi (11.03.2011 r.).



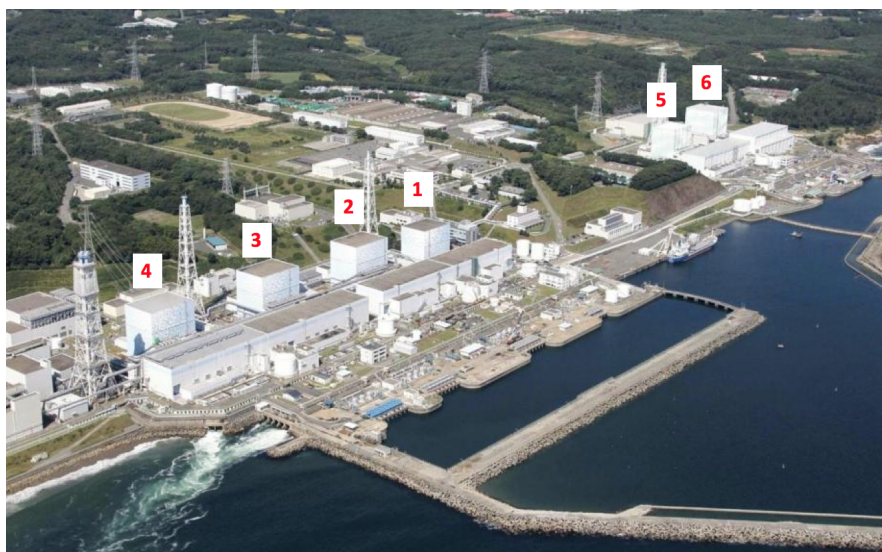
Rysunek 1.2: Położenie elektrowni jądrowej Fukushima Dai-ichi. Dane mapy ©2018, Google, ZENRIN.

1.1.2 Charakterystyka FDNPP

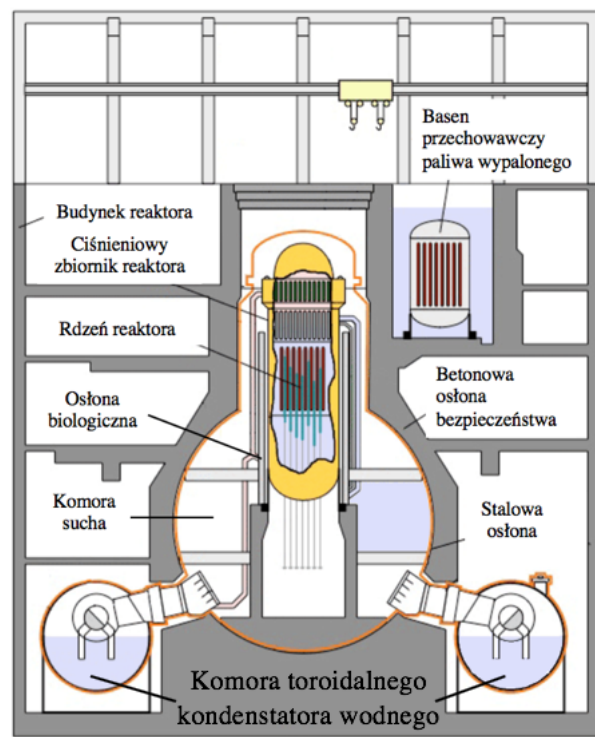
FDNPP (rys.1.3) była przed 11 marca 2011 r., jedną z 17 działających elektrowni jądrowych w Japonii, pokrywających w ok. 30% zapotrzebowanie systemu energetycznego tego kraju. FDNPP dostarczała do sieci energetycznej ok. 4 700 MW energii a w jej skład wchodziło sześć reaktorów typu BWR (Boiling Water Reactor) drugiej generacji (wdrażanych od lat 70 XX w.). Uproszczony schemat budowy reaktora typu BWR eksploatowanego w FDNPP został przedstawiony na rys. 1.4. Bloki energetyczne FDNPP (zajmującej obszar 3.5 km²) zostały uruchomione w latach 1970 - 1978 a pierwszy z nich włączony do sieci energetycznej w marcu 1971 r. Wybrane dane dotyczące poszczególnych reaktorów w tym: moc, rodzaj wykorzystywanego paliwa, liczba prętów paliwowych, etc. zostały zebrane w tab. 1.1. Średni czas trwania kampanii paliwowej w reaktorach FDNPP wynosił 13 miesięcy. W dniu trzęsienia ziemi w 2011 r., tylko reaktory nr. 1, 2, 3 działały zaś pozostałe były wyłączone w celu przeprowadzenia kontroli okresowych. Paliwo jądrowe z rdzenia reaktora nr. 4, zostało przeniesione do basenu przechowawczego jeszcze przed trzęsieniem ziemi (wyłączenie reaktora 29.11.2010), w ramach rutynowych działań. Zestawy paliwowe bloków nr. 5 i 6 pozostawały w rdzeniach

wyłączonych reaktorów (wyłączenie odpowiednio 2.01.2011 i 13.08.2010) generując jedynie ciepło powyłączeniowe.

Należy dodać, że FDNPP było pierwszą elektrownią zbudowaną i zarządzaną przez Tokyo Electric Power Company, Incorporated (TEPCO).



Rysunek 1.3: Elektrownia jądrowa Fukushima Dai-ichi [3].



Rysunek 1.4: Schemat budowy reaktora typu BWR MARK I [4].

Tablica 1.1: Wybrane dane i parametry bloków energetycznych elektrowni Fukushima Dai-ichi [1], [5]

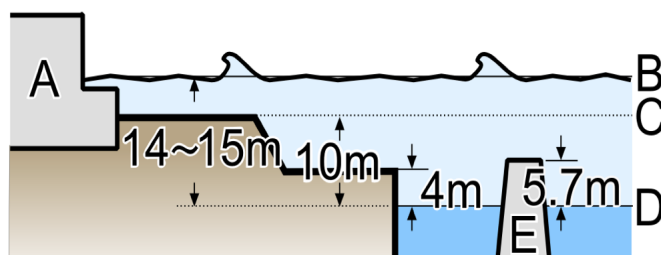
Nr. bloku energetycznego	1	2	3	4	5	6
Rozpoczęcie budowy	09.1967	05.1969	10.1970	09.1972	12.1971	05.1973
Włączenie do sieci energetycznej	03.1971	07.1974	03.1976	10.1978	04.1978	10.1979
Typ reaktora	BWR-3 Mark I	BWR-4 Mark I	BWR-4 Mark I	BWR-4 Mark I	BWR-4 Mark I	BWR-5 Mark II
Producent	General Electric	General Electric	Toshiba	Hitachi	Toshiba	General Electric
Moc reaktora elektryczna /termiczna (MW(e)/MW(th))	460/1380	784/2381	784/2381	784/2381	784/2381	1100/3293
Liczba zestawów paliwowych	400	548	548	548	548	764
UOX						
Zestawy paliwowe typu 8 x 8	68	-	-	-	-	-
Średnie zbogacenie ²³⁵ U (%)	3.4	-	-	-	-	-
Wypalenie średnie/max (GW d/t)	39.5/50.0	-	-	-	-	-
Zestawy paliwowe typu 9 x 9	332	548	516	548	548	764
Średnie zbogacenie ²³⁵ U (%)	3.6	3.8	3.8	3.8	3.8	3.7
Wypalenie średnie/max (GW d/t)	45.0/55.0	45.0/55.0	45.0/55.0	45.0/55.0	45.0/55.0	45.0/55.0
MOX						
Zestawy paliwowe typu 8 x 8	-	-	32	-	-	-
Średnie zbogacenie ²³⁵ U/ ²³⁹ Pu (%)	-	-	1.1-1.2/2.7-5.3	-	-	-
Wypalenie średnie/max (GW d/t)	-	-	33/40	-	-	-
Stan reaktora przed trzęsieniem ziemi	On	On	On	Off (29.11.2010)	Off (2.01.2011)	Off (13.08.2010)
Moc rdzenia w czasie awarii (MW (th))	1380	2381	2381	0	Ciepło powyłączeniowe	Ciepło powyłączeniowe
Basen przechowawczy paliwa jądrowego						
Liczba zestawów paliwowych (w tym nowe)	392 (100)	615 (28)	566 (52)*	1535(204)	994 (48)	940 (64)

UOX - Uranium oxide fuel (typ paliwa jądrowego), MOX - Mixed oxide fuel (typ paliwa jądrowego), On - reaktor włączony, Off - reaktor wyłączony, * - tylko zestawy z paliwem typu UOX

1.1.3 Przebieg awarii jądrowej w FDNPP

Sekwencja zdarzeń, podczas awarii FDNPP, została bardzo skrupulatnie przedstawiona i dogłębnie przeanalizowana przez ekspertów m.in. w obszernym dokumencie rządu Japonii [1] czy kilkutomowym raporcie Międzynarodowej Agencji Energii Atomowej (IAEA) [5]. W poniższym rozdziale zostaną przytoczone tylko niektóre fakty (najważniejsze z punktu widzenia niniejszej pracy), mające wpływ na poprawność wyciąganych wniosków oraz uzasadnienie proponowanych scenariuszy zdarzeń, tworzonych na podstawie badań własnych. Dla większej przejrzystości, wszystkim zdarzeniom przypisano atrybut czasu (według czasu JST) i umieszczone je na osi czasu (tab.1.2).

11.03.2011 po zarejestrowaniu przez czujniki, zlokalizowane na terenie FDNPP, wstrząsów o amplitudzie większej niż wartość zadana (5:46 czasu JST), nastąpiło uaktywnienie ochrony sejsmicznej reaktorów a następnie automatyczne wyłączenie działających bloków elektrowni (nr. 1, 2 i 3) poprzez natychmiastowe i pełne wprowadzenie prętów kontrolnych do rdzeni reaktorów (procedura SCRAM). 40 minut po głównym wstrząsie, do wschodniego wybrzeża Japonii (gdzie usytuowana jest FDNPP) dotarła pierwsza fala tsunami o wysokości 4 - 5 m a 10 minut później (15:37 JST) druga, o amplitudzie 14 - 15 m (rys.1.5) [2]. Betonowa bariera (falochron), umiejscowiona przed elektrownią, została zaprojektowana tak by chronić FDNPP przed tsunami o max. wysokości 5.7 m. Fale tsunami zatopiły infrastrukturę i urządzenia elektrowni zlokalizowane od strony oceanu jak i główne budynki FDNPP, położone ok. 6 m wyżej, w tym budynki: reaktorów i turbin [5].



Rysunek 1.5: Schemat przedstawiający FDNPP w trakcie nadejścia tsunami 11.03.2011 [4].

A - budynki FDNPP, B - poziom tsunami z 11.03.2011, C - poziom gruntu, D - poziom morza, E - falochron

Po awaryjnym wyłączeniu reaktorów, w ich rdzeniach następowała generacja ciepła powyłaczeniowego (ok. 1.5 % mocy termicznej tj. 22 MW blok nr. 1, 33 MW blok nr. 2 i 3 [6]). Kilka minut po tsunami (tab.1.1), systemy chłodzenia reaktorów zostały odcięte od zasilania (zniszczenie sieci elektroenergetycznej i tym samym zasilania AC (loss of offsite power LOOP), zalanie/zniszczenie generatorów Diesla, etc.). Brak optymalnego chłodzenia rdzeni reaktorów, powodował w dłuższej perspektywie utratę chłodziwa (parowanie) co doprowadziło do odsłonięcia prętów paliwowych i uszkodzenia/stopienia rdzeni reaktorów nr. 1, 2 i 3 (tab.1.2).

Konsekwencją generacji ciepła, w wyniku rozpadów promieniotwórczych produktów rozszczepienia zawartych w paliwie jądrowym, było również rozpoczęcie egzotermicznej reakcji cyrkonu (pochodzącego ze stopu Zircaloy, stanowiącego materiał koszulek paliwowych) z wodą (reakcja utleniania) w wyniku, której powstawał wodór (rów.1.1) .



Wodór zaś wchodził w reakcje z tlenem (rów.1.2).



W temperaturze pokojowej szybkość łączenia się wodoru z tlenem jest niezmiernie mała zaś w temperaturze wyższej niż 720 K reakcja przebiega wybuchowo. Najgwałtowniejszy jej przebieg zachodzi wtedy gdy wodór z tlenem zmieszane są w stosunku objętościowym 2:1 (mieszanka piorunująca) [7].

Tablica 1.2: Zestawienie wybranych zdarzeń mających miejsce podczas awarii FDNPP w blokach nr. 1, 2 i 3 [1], [5], [8].

Data	Blok 1	Blok 2	Blok 3
11.03.2011		trzęsieni ziemi 14:46	
		wyłączenie reaktorów	
		tsunami 15:37	
	utrata zasilania AC 15:37	utrata zasilania AC 15:41	utrata zasilania AC 15:38
	odsłonięcie prętów paliwowych 18:10		
	uszkodzenie rdzenia 18:50		
12.03.2011	podłączenie pomp pożarowych zasilanych świeżą wodą 5:46		
	wybuch wodoru 15:36		
	podłączenie pomp pożarowych zasilanych wodą morską 19:04		
13.03.2011			odsłonięcie prętów paliwowych 06:00
			uszkodzenie rdzenia 10:40
			podłączenie pomp pożarowych zasilanych wodą morską 13:12
14.03.2011		odsłonięcie prętów paliwowych 17:00	wybuch wodoru 11:00
		uszkodzenie rdzenia 19:20	
		podłączenie pomp pożarowych zasilanych wodą morską 19:54	
15.03.2011		eksplozja w komorze kondensatora wodnego 6:00	

wszystkie godziny podane wg. czasu JST, AC - prąd zmienny (alternating current)

Niebezpieczny wzrost ciśnienia i temperatury w obudowach bezpieczeństwa reaktorów (wynik braku optymalnego chłodzenia), wymusił intencyjną (przez system wentylacji/ zawór bezpieczeństwa) lub nieintencyjną (rozszczelnienie obudowy bezpieczeństwa) wentylację. Wówczas to para wodna, gazy szlachetne, aerozole radioaktywne i wodór wydostały się na zewnątrz. Duża koncentracja wodoru w kontakcie z tlenem, wywołała eksplozje w blokach nr. 1, 3 i 4 (tab.1.2), niszcząc budynki reaktorów. Emisje izotopów radioaktywnych z reaktorów nr. 1, 2 i 3 spowodowały skażenie środowiska. Przyczyną eksplozji w górnej części budynku reaktora nr. 4, był wodór pochodzący z reaktora nr. 3 (wspólny dukt). W reaktorze nr. 2 zareje-

strowano odgłos wybuchu niewiadomego pochodzenia w okolicach kondensatora wodnego, po czym nastąpiło tam rozszczelnienie obudowy bezpieczeństwa [6].

W blokach nr. 5 i 6 oraz basenach przechowawczych wypalonego paliwa jądrowego bloków nr. 1, 2, 3, 5 i 6, nie doszło do odsłonięcia prętów paliwowych (poziom wody powyżej prętów paliwowych) i emisji izotopów promieniotwórczych do środowiska. W basenie przechowawczym bloku nr. 4 podejrzewano uszkodzenia prętów paliwowych ze względu na wybuch wodoru i pożar w budynku reaktora, niemniej jednak czynności kontrolne pokazały brak systematycznych uszkodzeń [6].

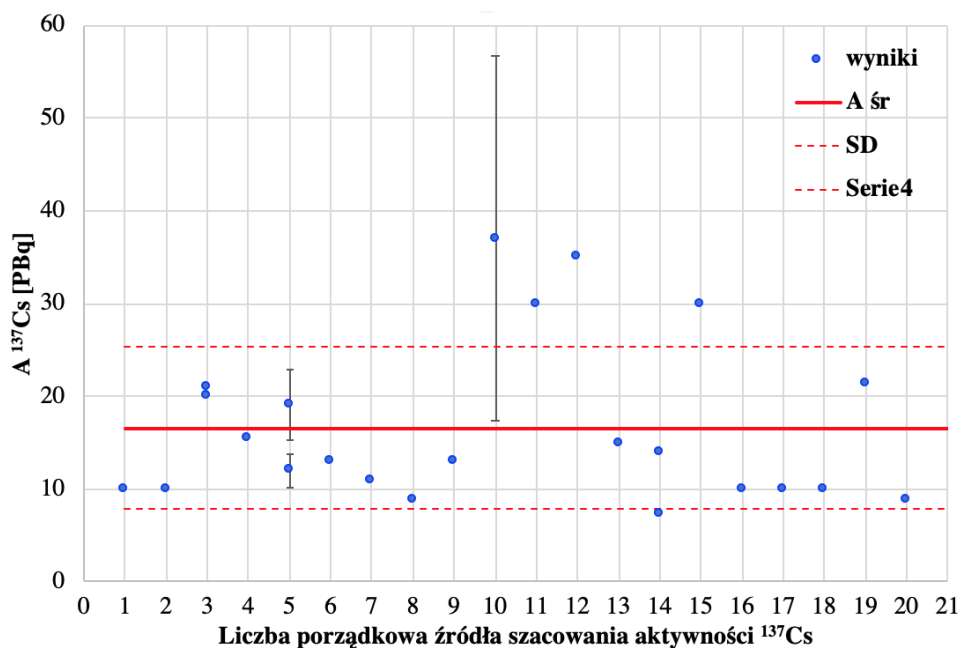
Ok. 11 - 15 dni (w zależności od bloku elektrowni) od dnia trzęsienia ziemi, przywrócono w FDNPP zasilanie z zewnętrznej sieci elektroenergetycznej (AC) zaś po 14 - 15 dniach uruchomiono chłodzenie wodą słodką [1].

1.1.4 Izotopy promieniotwórcze uwolnione do środowiska

Oszacowanie aktywności izotopów uwolnionych do środowiska podczas awarii FDNPP (pomimo upływu 8 lat od zdarzenia) jest problematyczne i wciąż budzi wiele kontrowersji. Powodem takiej sytuacji, jest utrudniony dostęp do danych, ogólnie rzecz ujmując, charakteryzujących FDNPP (np: składu paliwa jądrowego, wzbogacenia paliwa, historii pracy reaktorów (napromienienia paliwa jądrowego), gęstości mocy reaktorów, rozkładu strumienia neutronów w reaktorach, wypalenia paliwa jądrowego, etc.) ze względu na wymogi bezpieczeństwa oraz ograniczenia handlowe, ale także różnice w podejściu metodycznym do zagadnienia szacowania uwolnień. Doskonałym przykładem, może tu być ^{137}Cs . W pracach prezentujących wyniki oszacowań jego uwolnień, stosuje się dwa podejścia: 1. symulacje w oparciu o informacje związane z poszczególnymi reaktorami FDNPP (jak powyżej) i 2. symulacje w oparciu o dane eksperymentalne tj. depozycję w środowisku. Oba sposoby bazują na założeniach, które niekoniecznie są kompletne i prawdziwe, i ma to wpływ na szerokość zakresu szacowanych wielkości. Zebrane dane w raporcie IAEA [5], z 20 różnych prac pokazują, że średnia i mediana szacowanych aktywności ^{137}Cs uwolnionego do atmosfery, wynoszą odpowiednio 16 PBq i 13 PBq, zaś przedział zmienności (7.8 PBq, 25 PBq). Pełen zbiór wartości, został przedstawiony na rys. 1.6. Prezentowane aktywności ^{137}Cs , mają rozkład logarytmiczno - normalny i 14 z przedstawionych przypadków ma wartość mniejszą niż obliczona średnia. Dodatkowo należy nadmienić, że na rozkład ten, nie ma wpływu sposób wykonanego szacowania, tzn. czy symulacje zostały przeprowadzone metodą bazującą na warunkach początkowych związanych z reaktorami czy na doświadczalnie wyznaczonej depozycji ^{137}Cs w środowisku.

Podobnie jak w przypadku Cs, dyskusje w literaturze toczą się także wokół m.in. Pu. Schwantes et al. (2012) [9] szacował uwolnioną aktywność izotopów Pu na 0.002 ± 0.0003 % zawartości Pu w paliwie jądrowym bloków nr. 1 i 3, co jest równoznaczne z poziomem kilkudziesięciu GBq, z kolei Povinec et al. (2013) [6] bazując na danych z Nishihara (2012) [10] określił poziom uwolnienia Pu (^{238}Pu , ^{239}Pu oraz ^{240}Pu) na kilkanaście GBq, podczas gdy Zheng et al. (2013) [11] postulował jeszcze mniejszą aktywność, rzędu kilku GBq (^{238}Pu , ^{239}Pu oraz ^{240}Pu).

Dla spójności prowadzonych analiz i interpretacji wyników, poniższe opracowanie bazować będzie na wyselekcjonowanych danych zebranych w tab. 1.3 (będących w kręgu zainteresowania niniejszej pracy), dotyczących składu izotopowego paliwa jądrowego FDNPP (z uwzględnieniem bloku reaktora) a oszacowanych na podstawie pracy Nishihara et al. (2012) [10]. Dodatkowo tabelę uzupełniono o wielkości uwolnień do atmosfery zaprezentowane przez rząd Japonii w lipcu 2011 r. [1] i poprawione w październiku 2011 r. [12].



Rysunek 1.6: Oszacowane aktywności ^{137}Cs uwolnionego do atmosfery, na podstawie 20 opracowań zebranych w raporcie IAEA [5] - wykres zmodyfikowany.

A_r - wartość średnia aktywności ^{137}Cs dla wszystkich prezentowanych przypadków, SD - odchylenie standardowe, dla przypadków 3, 5, 13 - przedstawiono zakresy szacowanych wartości aktywności ^{137}Cs

Jako pierwsze do atmosfery uwolnione zostały gazy szlachetne (produkty rozszczepienia). Przyjęto, kierując się ich właściwościami atomowymi (konfiguracja elektronowa s^2p^6 oraz ujemne powinowactwo elektronowe [7]) oraz informacją o skali uszkodzeń/rozszczelnień prętów paliwowych w reaktorach nr. 1, 2 i 3, że ich całkowita aktywność wyprodukowana w reaktorach FDNPP została wyemitowana do środowiska. To oznacza, że ok. 83.7 PBq tj. 5.8 kg ^{85}Kr (23.1 PBq reaktor nr. 1, 31.1 PBq z reaktor nr. 2, 29.5 PBq reaktor nr. 3) oraz 12 000 PBq tj. 1.7 kg ^{133}Xe (2 710 PBq reaktor nr. 1, 4 670 PBq reaktor nr. 2, 4 670 PBq reaktor nr. 3) trafiło do atmosfery.

Drugimi w kolejności były te pierwiastki, których temperatura wrzenia jest niższa niż zakres temperatur 2100 °C - 2300 °C [13], szacowanych jako prawdopodobne temperatury rdzeni, w czasie gdy doszło do ich stopienia. Frakcja emitowana w postaci pary do atmosfery, z rozszczelnionych prętów paliwowych, szybko kondensowała tworząc aerozole (z wyjątkiem jodu). Frakcje izotopów pierwiastków lotnych takich jak: Te, I i Cs uwolnionych do atmosfery były zdecydowanie mniejsze niż gazów szlachetnych tj. na poziomie kilku procent. Dla np.: ^{132}Te frakcja ta stanowiła 1 % czyli 88.4 PBq (7.7 g), dla ^{131}I 2.6 % i 159 PBq (35 g), dla ^{134}Cs 2.4 % i 17.5 PBq (0.35 kg) oraz dla ^{137}Cs 2.2 % i 15.3 PBq (4.8 kg).

Najmniejszymi frakcjami były frakcje aktynowców (pierwiastki nielotne, o wysokiej temperaturze topnienia powyżej 1 000°C z wyjątkiem neptunu i plutonu, dla których temperatury te wynoszą odpowiednio 640°C i 641°C [14]). Ich aktywności były milion razy mniejsze niż pierwiastków lotnych i tak np.: uwolniona frakcja ^{238}Pu z FDNPP stanowiła 0.00013 % całkowitej aktywności wyprodukowanej w reaktorach tj. 18.8 GBq, frakcja ^{239}Pu 0.00012 % czyli 3.23 GBq, frakcja ^{240}Pu 0.00010 % czyli 3.13 GBq zaś frakcja ^{242}Cm 0.00004 % co odpowiadało 102 GBq (tab.1.3). Z przedstawionych oszacowań wynika, że masa rozproszonych w atmosferze izotopów Pu (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu) po awarii w FDNPP wynosiła łącznie 1.8 g.

Tablica 1.3: Zestawienie aktywności wybranych izotopów ze składu paliwa jądrowego FDNPP w blokach nr. 1,2 i 3 w dniu 2011.03.11 oraz aktywności tych izotopów uwolnionych do atmosfery [1], [6], [10].

Izotop	T1/2	FDNPP 2011.03.11				Uwolnienie do atmosfery				R* [%]
		1 A [Bq]	2 A [Bq]	3 A [Bq]	Suma A [Bq]	1 A [Bq]	2 A [Bq]	3 A [Bq]	Total A [Bq]	
¹³¹ I	8.0252 d	1.35E+18	2.34E+18	2.33E+18	6.01E+18	1.20E+16	1.40E+17	7.00E+15	1.59E+17	2.6
¹³² Te	3.204 d	1.95E+18	3.36E+18	3.37E+18	8.69E+18	2.50E+16	5.70E+16	6.40E+15	8.84E+16	1
¹³⁴ Cs	2.0652 y	1.90E+17	2.77E+17	2.52E+17	7.19E+17	7.10E+14	1.60E+16	8.20E+14	1.75E+16	2.4
¹³⁶ Cs	13.16 d	5.42E+16	8.17E+16	8.18E+16	2.18E+17					
¹³⁷ Cs	30.08 y	2.03E+17	2.56E+17	2.41E+17	7.00E+17	5.90E+14	1.40E+16	7.10E+14	1.53E+16	2.2
²³⁸ Pu	87.7 y	4.63E+15	4.58E+15	5.54E+15	1.47E+16	5.80E+08	1.80E+10	2.50E+08	1.88E+10	0.00019
²³⁹ Pu	24110 y	7.00E+14	8.83E+14	1.04E+15	2.62E+15	8.60E+07	3.10E+09	4.00E+07	3.23E+09	0.00013
²⁴⁰ Pu	6561 y	8.83E+14	1.03E+15	1.35E+15	3.27E+15	8.80E+07	3.00E+09	4.00E+07	3.13E+09	0.0001
²⁴¹ Pu	14.329 y					3.50E+10	1.20E+12	1.60E+10	1.25E+12	
²⁴² Cm	162.8 d	8.94E+16	8.97E+16	1.04E+17	2.83E+17	1.10E+10	7.70E+10	1.40E+10	1.02E+11	0.00004
²⁴⁴ Cm	18.1y	2.71E+15	3.22E+15	2.71E+15	8.64E+15					

R - stosunek aktywności uwolnionej do aktywności całkowitej (sumarycznej) danego izotopu w FDNPP

Tablica 1.4: Zestawienie aktywności wybranych izotopów ze składu paliwa jądrowego FDNPP w blokach nr. 1,2 i 3 uwolnionych do wody chłodzącej oraz Pacyfiku[6], [10]

Izotop	T1/2	Uwolnienie do wody chłodzącej				R* [%]	Uwolnienie do Pacyfiku Total A [Bq]	R* [%]
		1 A [Bq]	2 A [Bq]	3 A [Bq]	Total A [Bq]			
¹³¹ I	8.0252 d	9.30E+16	1.22E+18	6.28E+17	1.94E+18	32		
¹³⁴ Cs	2.0652 y	1.29E+16	9.13E+16	4.28E+16	1.47E+17	20	3.50E+15	0.49
¹³⁶ Cs	13.16 d	3.79E+15	2.21E+16	1.15E+16	3.73E+16	17		
¹³⁷ Cs	30.08 y	1.26E+16	8.69E+16	4.10E+16	1.41E+17	20	3.50E+15	0.5

R - stosunek aktywności uwolnionej do aktywności całkowitej (sumarycznej) danego izotopu w FDNPP

W literaturze nie spotyka się informacji, określających poziom uwolnienia ^{241}Am . Jednak pewne dane na temat jak będzie zmieniała się obecność tego izotopu w środowisku, można uzyskać opierając się na wynikach symulacji dotyczących ^{241}Pu (izotop macierzysty ^{241}Am , rozdz. 1.2.4). Jeśli przyjmiemy, że do atmosfery zostało wyemitowane $1.25 \cdot 10^{12}$ Bq ^{241}Pu (tab. 1.3), czyli aktywność o ok. dwa rzędy wielkości większa niż ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$, oraz że cały ten izotop został zdeponowany w różnych elementach ekosystemu lądowego i morskiego, to korzystając z przekształconej zależności 1.6 możemy wnioskować, że aktywność ^{241}Am osiągnie maksimum w 2085 r. i będzie wynosiła ok. 37 GBq.

Skażenia wynikające z przedostania się radionuklidów do wody tj. chłodziwa lub Pacyfiku nie będą rozpatrywane. Niemniej jednak, dla pełnej oceny awarii jądrowej w FDNPP, zostaną przytoczone wybrane dane. Należy pamiętać, że ten rodzaj skażeń został gorzej rozpoznany i opisany niż uwolnienia do atmosfery.

Uszkodzenie rdzeni reaktorów (rozszerzenie prętów paliwowych i ich stopienie) spowodowało, że materiał radioaktywny w ilościach masowych dostał się na dno ciśnieniowych zbiorników reaktorów a stamtąd do komór suchych obudowy bezpieczeństwa, do których włączana była awaryjnie woda. Bezpośredni kontakt wody z paliwem jądrowym czy też omywanie skażonych powierzchni wewnątrz reaktorów, powodowały jej kontaminację. Na podstawie wyników oszacowań umieszczonych w tab. 1.4 można wnioskować, że łącznie ok. 32 % ^{131}I tj. 0.42 kg oraz po ok. 20 % ^{134}Cs tj. 3.1 kg i ^{137}Cs czyli 44 kg zostało zdeponowane w wodzie wewnątrz reaktorów (tab. 1.4). Należy pamiętać, że o ile relatywnie krótki czas połowicznego zaniku ^{131}I (8.03 dnia) uprawnia do stwierdzenia, że ten rodzaj kontaminacji wody nie będzie długotrwałym i dominującym problemem dla procesu dekontaminacji w FDNPP, o tyle zagrożenie gospodarki i przechowywania wody skażonej izotopami Cs (np: ^{134}Cs : $T_{1/2}=2.07$ lat i ^{137}Cs : $T_{1/2}=30.08$ lat) stanowi już poważne wyzwanie.

Akcja awaryjnego gaszenia pożarów i schładzania reaktorów, jak i bezpośrednie wycieki chłodziwa z reaktorów do Pacyfiku (kwiecień 2011[6]), spowodowały skażenie wód oceanu. Szacuje się, że w wyniku w/w zdarzeń do Pacyfiku zostało odprowadzone po ok. 3.5 PBq ^{134}Cs (73 g) i ^{137}Cs (1.1 kg) (tab. 1.4).

1.1.5 Awaria w FDNPP na skali INES

Międzynarodowa skala INES (International Nuclear and Radiological Event Scale) jest to 7-stopniowa skala do jednoznacznej klasyfikacji zdarzeń jądrowych i radiacyjnych (rys.1.7).

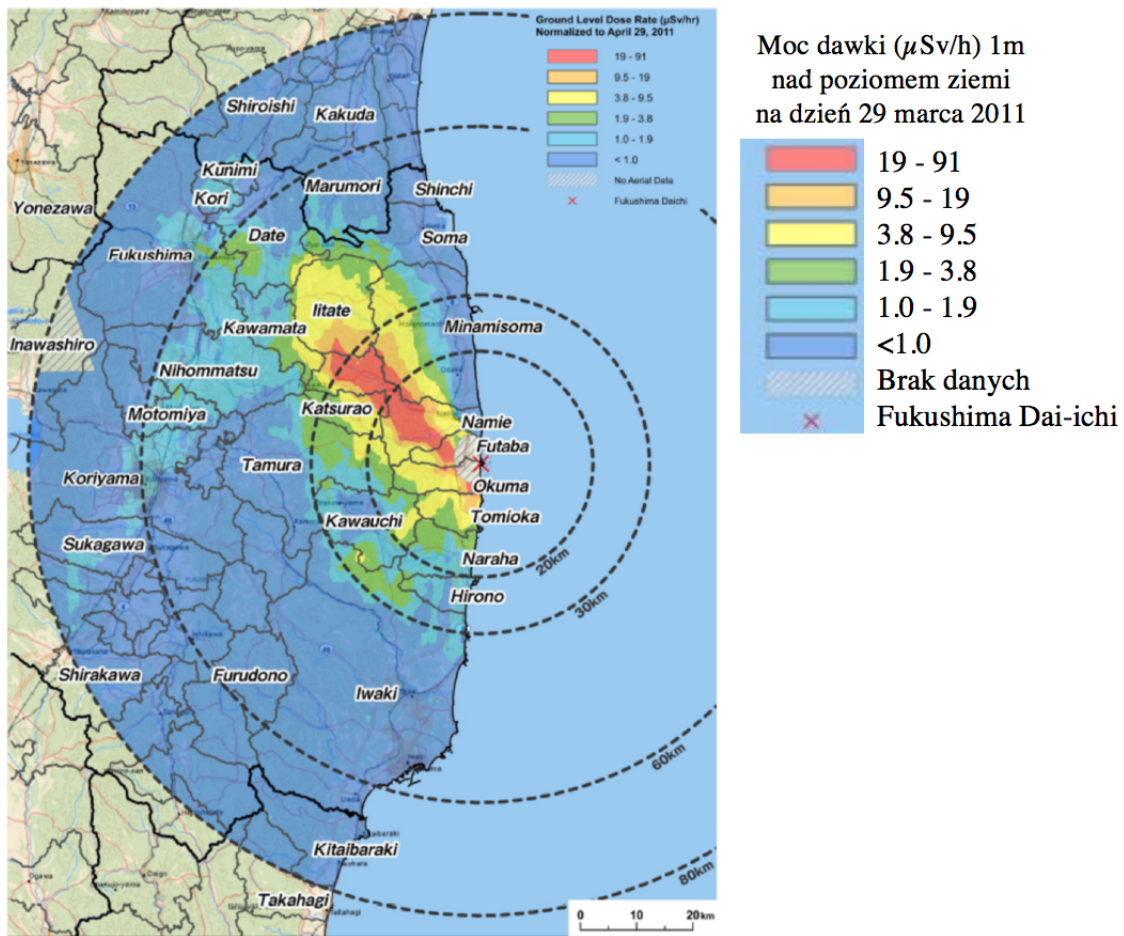


Rysunek 1.7: Międzynarodowa skala zdarzeń jądrowych i radiologicznych - INES.

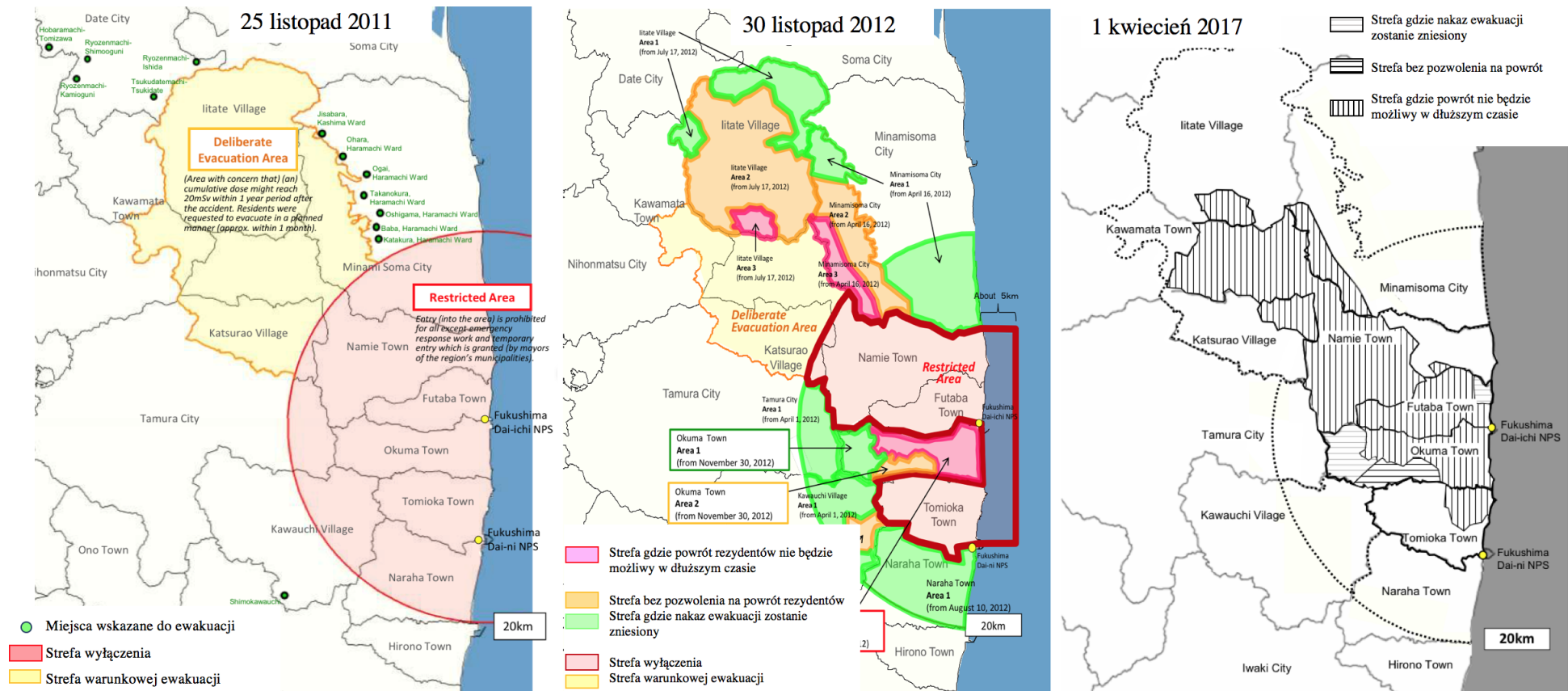
Awaria elektrowni FDNPP była bardzo złożonym zdarzeniem jądrowym (rozdz.1.1.3). Na podstawie danych o wielkości promieniotwórczych uwolnień do środowiska jak i danych dotyczących stanu poszczególnych reaktorów uzyskanych do 18 marca 2011 r. awarię w FDNPP oceniano w kontekście każdego reaktora osobno. I tak, klasyfikacja upoważnionej japońskiej Nuclear and Industrial Safety Agency (NISA) przedstawiała się następująco: blok nr. 1. - poziom 5 (awaria z rozległym skutkiem), blok nr. 2 - poziom 5, blok nr. 3 - poziom 5, blok nr. 4 - poziom 3 (poważny incydent). Poziom 5 skali INES przyjmowany jest w oparciu o takie zdarzenia jak: poważne uszkodzenie rdzenia reaktora, wielkie uwolnienie materiału radioaktywnego w obiekcie z dużym prawdopodobieństwem narażenia ludności [15]. Dnia 12 kwietnia 2011 r. w obliczu nowych oszacowań i zdarzeń, NISA ogłosiła zmianę podejścia do oceny awarii w FDNPP. Sklasyfikowano wówczas łącznie wszystkie zdarzenia jądrowe w elektrowni na poziomie 7 czyli nadano im wszystkim jedną rangę wielkiej awarii. Głównym powodem zmiany decyzji było ponowne oszacowanie uwolnień promieniotwórczych z reaktorów. Według ówczesnych oszacowań NISA, w wyniku awarii wyemitowano do środowiska ok. 130 PBq ^{131}I oraz 6.1 PBq ^{137}Cs (co było równoważne 240 PBq ^{131}I). W związku z tym całkowita wyemitowana aktywność (równoważna 370 PBq ^{131}I) zdecydowanie przekraczała dolną granicę dla zdarzeń na poziomie 7 skali INES określoną jako dziesiątki tysięcy TBq [16]. Awaria na terenie prefektury Fukushima była drugą po Czarnobylu (1986 r.) awarią jądrową z taką klasyfikacją. Przygotowane oszacowania, pozwoliły na określenie stosunku skali uwolnień pomiędzy tymi dwoma awariami (aktywność uwolnienia w Czarnobylu ^{131}I i ^{137}Cs wynosiła 5 200 PBq - aktywność równoważna ^{131}I) i ostatecznie przyjęto, że uwolnienia promieniotwórcze z FDNPP wynosiły ok. 10 % uwolnień z Czarnobyla [16].

Ilości wyemitowanych izotopów promieniotwórczych z FDNPP, spowodowały skażenia wokół elektrowni mogące mieć ujemny wpływ na cały ekosystem, w tym populację zamieszkującą tamten teren. Władze lokalne podjęły decyzję o ewakuacji ludności (był to kolejny warunek do klasyfikacji awarii FDNPP na poziomie 5 a później 7). Utworzenie strefy ewakuacji po raz pierwszy zostało zarządzane 11.03.2011 o godz. 20:50 na obszarze do 2 km od FDNPP a następnie sukcesywnie strefę tę powiększono do 20 km 12.03.2011 o godz. 18:25 (11.03.2011 godz. 21:23 strefa do 3 km, 12.03.2011 godz. 5:44 strefa do 10 km) [1]. Decyzje o wielkości strefy ewakuacji, podejmowano najpierw w oparciu o informacje o stanie reaktorów w FDNPP a później o dokonywane pomiary mocy dawki i przewidywań/symulacji dawek dla populacji. Jedną z najbardziej efektywnych ekspedycji pomiarowych, została przeprowadzona we współpracy Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT, Japonia) oraz the U.S. Department of Energy (DOE, USA), między 6 a 29 kwietnia 2011 r. Dwa helikoptery (Bell 412, Japonia oraz Bell UH-1, USA) i samolot (Beechcraft C-12, USA) wykonały 42 loty na wysokości 150 - 700 m nad powierzchnią ziemi, skanując teren w promieniu 80 km od FDNPP (do 60 km USA, 60-80 km Japonia). Wyniki tych badań (rys.1.8) pokazały jaka jest skala skażenia oraz jaki jest kształt i kierunek strefy o największej depozycji izotopów promieniotwórczych z FDNPP. Te i inne badania, wpłynęły na powstanie nowego dokumentu (26.12.2011), w którym zarządzano utworzenie nowych stref tj: 1. strefa gdzie przewidywana dawka dla mieszkańca nie przekroczy 20 mSv w ciągu roku (strefa gdzie nakaz ewakuacji zostanie zniesiony), 2. strefa gdzie przewidywana dawka dla mieszkańca będzie mieścić się pomiędzy 20 mSv a 50 mSv w ciągu roku (strefa gdzie mieszkańcy nie mają pozwolenia na powrót), 3. strefa gdzie przewidywana dawka dla mieszkańca będzie większa niż 50 mSv na rok (strefa gdzie powrót mieszkańców nie będzie możliwy w ciągu długiego czasu/strefa wyłączenia) [17]. Kształt nowo-utworzonych stref zmieniał się z czasem (rys.1.9) i prowadzonymi

badaniami oraz akcją dekontaminacji.



Rysunek 1.8: Rozkład mocy dawki wewnątrz strefy o promieniu 80 km wokół FDNPP, na wysokości 1 m nad poziomem ziemi na dzień 29 marca 2011 r. Badania MEXT i DOE [18].



Rysunek 1.9: Strefy ewakuacji wokół FDNPP w latach 2011, 2012 i 2017 [19].

1.2 Charakterystyka wybranych pierwiastków

W poniższym rozdziale zostaną omówione właściwości wybranych pierwiastków, których izotopy uwolnione do środowiska w trakcie awarii FDNPP, stały się przedmiotem badań opisanych w niniejszej pracy.

1.2.1 Jod

Jod należy do grupy fluorowców/halogenków (grupa 17). Został odkryty przez Bernarda Courtois w 1811 r. Jego podstawowe własności fizyczne i atomowe zostały zebrane w tab. 1.5.

Tablica 1.5: Zestawienie wybranych właściwości jodu [7].

Właściwości	Jod
Liczba atomowa	53
Konfiguracja atomowa	$5s^2 p^5$
Temperatura topnienia [K]	386.18
Tempearatura wrzenia [K]	457.6
Gestość [g/cm^3]	4.933
Stopnie utlenienia	-I, I, III, V i VII

Jod występuje w środowisku:

- w skałach najczęściej w formie AgI, CuI, $Cu(OH)IO_3$ i w wyniku wietrzenia zostaje uwolniony do atmosfery. Zawartość jodu w skorupie ziemskiej szacuje się na $5 \cdot 10^{-8} g g^{-1}$ [7],
- w wodach w postaci jodków (I^- , I^{-3}) lub jodanów (IO^- , IO_3^- , $H_4^-IO_6^-$). Pod wpływem promieniowania UV jod w formie IO^{-3} oraz I^- ulega przemianie do jodu pierwiastkowego, który uwalniany jest do atmosfery,
- w atmosferze w różnych postaciach fizykochemicznych tj. w formie elementarnej (I oraz I_2), w formie organicznej (najprostsza forma CH_3I , produkowana przez algi morskie i uwalniana do atmosfery - największe źródło jodu stabilnego w powietrzu) lub nieorganicznej (kwas jodowy). Część jodu ulega w powietrzu związaniu z aerozolami atmosferycznymi. Jod usuwany jest z atmosfery na skutek depozycji suchej i/lub mokrej [20].

Jod jest pierwiastkiem niezbędnym dla prawidłowego funkcjonowania organizmu człowieka. Jest on selektywnie akumulowany w tarczycy gdzie pełni funkcję podstawowego składnika syntezy hormonów tarczycy takich jak: tyroksyna (T_4) czy trójjodotyronina (T_3). Hormony tarczycy, warunkują przebieg wielu procesów fizjologicznych a także wpływają na rozwój i różnicowanie tkanek organizmów [21]. Jod dostaje się do organizmu drogą pokarmową i/lub drogą oddechową. Przyjmuje się, że 100 % jodu z przewodu pokarmowego zostaje wychwycone i zaabsorbowane w organizmie. Głównym źródłem jodu w diecie są podstawowe produkty spożywcze oraz woda. Dla drogi oddechowej, efektywność wychwytu jodu z płuc (bez względu na postać jodu) przyjmuje się, że wynosi 66 % [22].

Spółród 37 znanych izotopów jodu, tylko jeden jest stabilny tj. ^{127}I . Pozostałe izotopy niestabilne, powstają w wyniku reakcji rozszczepienia, aktywacji neutronowych w reaktorach (n, γ) lub reakcji jądrowych w akceleratorach (np.: $^{124}\text{Te}(p, 2n)^{123}\text{I}$, $^{122}\text{Te}(d, n)^{123}\text{I}$). Zestaw izotopów o najdłuższych czasach połowicznego zaniku został przedstawiony w tab. 1.6.

Tablica 1.6: Zestawienie wybranych izotopów jodu, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.

A	$T_{1/2}$	Typ rozpadu	E [keV]	I [%]
129	1.57E+7 (4) y	β^- γ	40.03 (92) (E_{av}) 39.578 (4)	100 (1) 7.51 (23)
130	12.36 (1) h	β^- γ	184.5 (11), 347.1 (13) (E_{av}) 536.066 (6), 668.536 (9), 739.512 (10)	46.7 (11), 48 (3) 99, 96 (3), 82 (3)
131	8.0252 (6) d	β^- γ	69.36 (25), 96.62 (26), 191.58 (30) (E_{av}) 284.305 (5), 364.489 (5), 636.989 (4)	2.08 (3), 7.23 (10), 89.6 (8) 6.12 (6), 7.16 (10), 81.5 (8)
132	2.295 (13) h	β^- γ	242.7 (23), 422.1 (26), 841.8 (28) (E_{av}) 667.714 (2), 772.60 (1), 954.55 (9)	13.0 (8), 19.0 (5), 19.0 (20) 98.700 (0), 75.6 (13), 17.6 (5)

A-liczba atomowa, $T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania, I-prawdopodobieństwo emisji, E_{av} -energia średnia, liczby w nawiasach oznaczają niepewność

Jod naturalny występuje w postaci dwóch izotopów: ^{127}I i dłużejżyciowego ^{129}I (tab.1.6). ^{129}I powstaje w wyniku: 1. spontanicznych rozszczepień ciężkich jąder, 2. oddziaływań promieniowania kosmicznego z ksenonem i tellurem w wyższych warstwach atmosfery. Ocenia się, że całkowita aktywność naturalnego ^{129}I w wodzie wynosi $7 \cdot 10^9$ Bq zaś w hydrosferze i litosferze jest on na poziomie 10^{12} Bq (wyniki otrzymane na podstawie wartości stosunku $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ w wodzie morskiej, który równy jest $3 \cdot 10^{-14}$) [22].

1.2.2 Cez

Cez zaliczany jest do grupy litowców (I grupa główna układu okresowego - metale alkaliczne). Pierwiastek ten odkryli w 1860 r. chemik Robert Bunsen i fizyk Gustav Kirchhoff. Jego podstawowe własności fizyczne i atomowe zostały zebrane w tab. 1.7.

Tablica 1.7: Zestawienie wybranych właściwości cezu [7].

Właściwości fizyczne	Cez
Liczba atomowa	55
Konfiguracja atomowa	$6s^1$
Temperatura topnienia [K]	301.6
Tempearatura wrzenia [K]	978
Gestość [g/cm^3]	1.9
Stopnie utlenienia	-I, I

Cez tworzy jony jednowartościowe M^+ i nie występuje na wyższych stopniach utlenienia, a jego związki są niemal wyłącznie jonowe. W przeciwieństwie do innych litowców

(Na, K) jest pierwiastkiem mało rozpowszechnionym w przyrodzie. Szacuje się, że jego zawartość:

- w skorupie ziemskiej jest na poziomie kilku 10^{-6} g g^{-1} ($3.2 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ [7], [23]) przy czym w granitach ok. $1 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ a w skałach osadowych ok. $4 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ [24]. Największym naturalnym źródłem Cs są złoża pollucytu zawierające od 5 % do 32 % Cs_2O (np.:Manitoba w Kanadzie) [25], [26],
- w glebach mieści się w przedziale od $0.3 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ do $25 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ [23],
- w wodach słodkich, jeziorach i rzekach zmienia się w przedziale od 0.01 mg m^{-3} do 1.2 mg m^{-3} podczas gdy w oceanach pomiędzy 0.5 mg m^{-3} a 2.0 mg m^{-3} [27],

W atmosferze cez występuje tylko w formie aerozolowej i usuwany jest z niej w wyniku suchej i/lub mokrej depozycji.

Do organizmu człowieka cez dostaje się głównie drogą pokarmową. Po wniknięciu, szybko rozprzestrzenia się w komórkach i rozkłada równomiernie w tkankach organizmu. Nie stwierdzono frakcjonacji izotopowej cezu a jego zawartość związana jest ze składem diety (głównie składnikami pochodzenia zwierzęcego) [22]. Oszacowano, że średnia zawartość Cs stabilnego w organizmie człowieka wynosi 1.4 mg i zmienia się w przedziale od 0.5 mg do 4.1 mg (kości: $5.9 \cdot 10^{-9} \text{ g g}^{-1}$ - $41.4 \cdot 10^{-9} \text{ g g}^{-1}$, mięśnie: $11.1 \cdot 10^{-9} \text{ g g}^{-1}$ - $78.8 \cdot 10^{-9} \text{ g g}^{-1}$, tkanki miękkie: $3.7 \cdot 10^{-9} \text{ g g}^{-1}$ - $44.2 \cdot 10^{-9} \text{ g g}^{-1}$) [28].

Spośród 39 znanych izotopów cezu (tak jak w przypadku jodu) tylko jeden jest stabilny tj. ^{133}Cs . Izotopy o najdłuższych czasach połowicznego zaniku zostały zestawione w tab. 1.8.

Tablica 1.8: Zestawienie wybranych izotopów cezu, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.

A	$T_{1/2}$	Typ rozpadu	E [keV]	I [%]
134	2.0652 (4) y	β^- γ	23.12, 123.49, 210.20 (E_{av}) 569.331 (3), 604.721 (2), 795.864 (4)	27.27 (3), 2.499 (9), 70.17 (7) 15.373 (17), 97.62 (11), 85.46 (6)
135	2.3E+6 (3) y	β^-	75.7 (4) (E_{av})	100 (0)
136	13.16 (3) d	β^- γ	98.78 (63), 120.99 (65), 219.00 (72) (E_{av}) 340.547 (8), 818.514 (12), 1048.073 (20)	70.3 (16), 10.5 (6), 13 (4) 42.2 (13), 99.704 (0), 80 (3)
137	30.08 (9) y	β^- γ^*	174.32 (6), 416.26 (8) (E_{av}) 661.657 (3)	94.7 (2), 5.3 (2) 85.1 (2)

A-liczba atomowa, $T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania, I-prawdopodobieństwo emisji, E_{av} -energia średnia, liczby w nawiasach oznaczają niepewność,
* - ^{137m}Ba ($T_{1/2}=2.552$ (1) m)

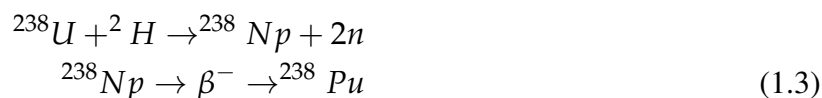
Wybrane izotopy Cs, są jednymi z najczęściej raportowanych izotopów, w badaniach dotyczących skażeń powstałych w wyniku awarii FDNPP. Niewiele jest prac poświęconych ^{135}Cs czy ^{136}Cs . ^{135}Cs jest czystym emitorem promieniowania beta, o energii 75.7 keV i ma wystarczająco długi czas połowicznego zaniku (2.3 mln lat, tab. 1.8), by służyć do identyfikacji śladów awarii FDNPP i kontrolować ich migrację przez bardzo długi okres. Jednak stosunek aktywności ^{135}Cs i ^{137}Cs , szacowany na ok. 0.02 (na podstawie tab. 1.3 oraz [29]) oraz bliskość

energii cząstek beta emitowanych przez te dwa izotopy (^{137}Cs : 174.3 keV, tab. 1.8) sprawia, że stosowane jądrowe metody pomiarowe są nieefektywne, a w związku z tym liczba opracowań bazujących na ^{135}Cs , oznaczanym już przy użyciu spektrometrii mas, jest wciąż bardzo mała [29]–[34]. Jeśli natomiast wziąć pod uwagę ^{136}Cs , to jego relatywnie krótki czas połowicznego rozpadu (13.2 dni, tab. 1.8) oraz abundancja w paliwie jądrowym zniszczonych rdzeni reaktorów FDNPP, o rząd wielkości mniejsza niż ^{134}Cs oraz ^{137}Cs (tab. 1.3), sprawiają, że izotop ten dość szybko (w ciągu kilku miesięcy) przestał być fizycznie dostępny w gromadzonych środowiskowych materiałach badawczych, podobnie jak inne produkty rozszczepienia takie jak izotopy: I (np.: ^{131}I , ^{132}I), Te (np.: ^{129m}Te , ^{132}Te), La (np.: ^{140}La), Sb (np.: ^{127}Sb , ^{129}Sb), Ba (np.: ^{140}Ba) czy Ag (np.: ^{110m}Ag), etc.

Najbardziej „wygodnymi” dla badaczy izotopami są ^{134}Cs oraz ^{137}Cs (w kontekście awarii w FDNPP). Decyduje o tym i czas połowicznego zaniku (odpowiednio 2.1 lat, 30.1 lat, tab. 1.8), i typ rozpadu (oba izotopy można zidentyfikować na podstawie promieniowania gamma) oraz wydajność produkcji i udział w paliwie jądrowym (tab. 1.3). Oba izotopy powstają w wyniku różnych reakcji jądrowych tj.: ^{134}Cs w reakcji $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}$ gdzie stabilny ^{133}Cs jest produktem rozpadu ^{133}Xe zaś ^{137}Cs powstaje wprost w wyniku rozszczepienia. Oba izotopy mają też w sobie komplementarny potencjał informacji o różnych procesach zachodzących w paliwie jądrowym.

1.2.3 Pluton

Pluton to transuranowiec należący do rodziny aktynowców. Odkrycie pierwszego z jego izotopów tj.: ^{238}Pu , zostało potwierdzone 23 lutego 1941 r. Grupa G.Seaborga w skład której wchodził m.in.: A. Wahl, J.W. Kennedy, E. McMillan otrzymała i zidentyfikowała powstający w procesie bombardowania ^{238}U deuteronami ^{238}Pu (rów.1.3).



Drugim z odkrytych izotopów był ^{239}Pu . O jego istnieniu (na podstawie teorii opartej o błędne założenia) informował E.Fermi już w 1934 r., ale dopiero w 1942 r. na uniwersytecie w Chicago udało się go otrzymać w ilościach masowych, w reakcji wysokoenergetycznych neutronów reaktorowych z ^{238}U :



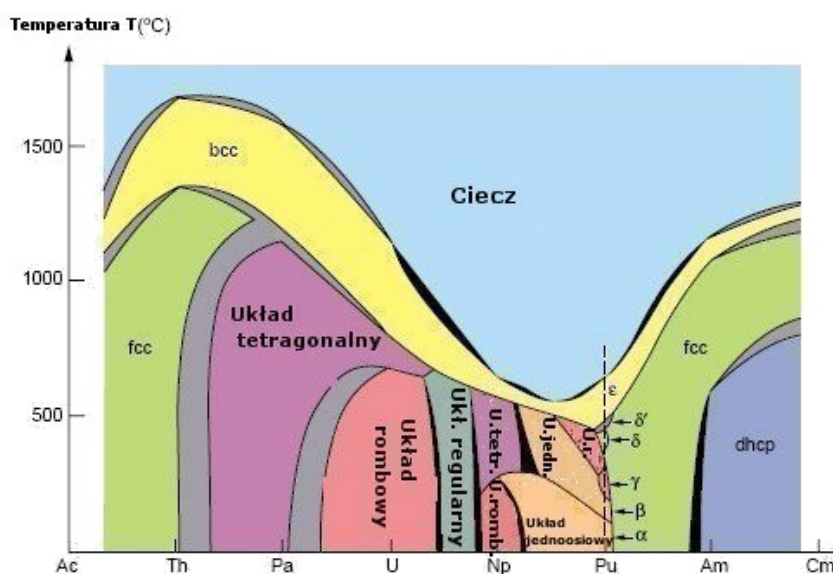
Wyniki badań przez kilka lat były utajnione gdyż wchodziły w zakres Projektu Manhattan. Zostały opublikowane kilka lat później w 1946 r. Inne izotopy Pu takie jak: ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{244}Pu zidentyfikowano w reakcjach wielokrotnego wychwytu neutronów przez jądro ^{239}Pu . Podstawowe właściwości Pu zostały przedstawione w tab. 1.9.

Pluton tak jak i inne aktynowce występuje w więcej niż jednej odmianie alotropowej (rys.1.10). Uważa się, że porównywalne energie poziomów energetycznych 5f i 7s sprawiają, że niewielkie zmiany temperatury czy ciśnienia prowadzą do transformacji struktury krystalicznej [36]. Konsekwencją polimorfizmu plutonu są znaczące różnice gęstości jego odmian sięgające 25 % [35]. Pluton jest metalem o bardzo dużej oporności elektrycznej ($145 \cdot 10^{-6} \Omega\text{cm}$ - odmiana α) oraz względnie małej przewodności cieplnej ($0.01 \text{ cal (cmsK)}^{-1}$ - odmiana α).

Tablica 1.9: Zestawienie wybranych właściwości plutonu [7], [35].

Właściwości fizyczne	Pluton
Liczba atomowa	94
Konfiguracja atomowa	$7s^25f^6$
Temperatura topnienia [K]	913
Tempearatura wrzenia [K]	3508
Gęstość [g/cm^3]	19.86^1
Stopnie utlenienia	II ² , III, IV, V, VI, VII ²

¹ - maksymalna gęstość odmiany α , ² - Pu na II i VII stopniu tworzy nietrwałe związki



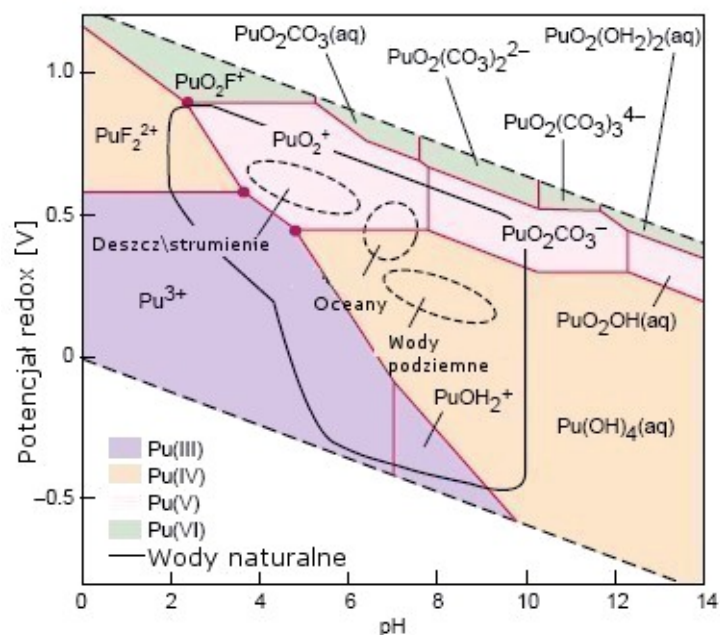
Rysunek 1.10: Diagram fazowy wybranych aktynowców z wyróżnionymi odmianami alotropowymi plutonu [37].

Pluton jest metalem nieszlachetnym, aktywnym chemicznie. W środowisku zwykle występuje w postaci mieszaniny różnych form chemicznych (rys.1.11):

- w wodach gruntowych czy oceanach, najczęściej jako Pu(IV),
- w potokach, solankach, wodach bagiennych tworzy związki jako Pu(III, V, IV),
- w wodzie deszczowej Pu(V).

Przyjmuje się, że lekkie aktynowce, w tym także Pu, tworzą stabilne kompleksy na IV stopniu utlenienia. Badania pokazały, że w odpowiednich warunkach środowiskowych (pH, potencjał redox) Pu(V) jest łatwiej rozpuszczalny niż Pu(IV). Najlepsze właściwości sorpcyjne na minerałach i powierzchniach skalnych wykazuje Pu(IV) [38].

Pluton może wnikać do organizmu człowieka drogą oddechową lub pokarmową. W trakcie procesu oddychania organizm ludzki zatrzymuje od 5 % do 25 % wdychanych aerozoli. Największą zainhalowaną frakcją są aerozole o rozmiarach poniżej $10 \mu m$ [39]. Forma chemiczna Pu decyduje o dalszej jego dystrybucji w organizmie. Pluton w formie słabo rozpuszczalnej (np. PuO) zostaje zdeponowany w płucach na okres kilku tygodni lub nawet miesięcy.



Rysunek 1.11: Diagram zależności potencjału redox od pH dla Pu w wodzie w obecności jonów wodorotlenkowych, węglanowych oraz fluorokowych [38].

Pu w formie rozpuszczalnej (azotany, cytryniany) przedostaje się do układu krwionośnego w ciągu godzin, a nawet minut od chwili inhalacji. Ostatecznie ok. 90 % zainhalowanego do płuc Pu ulega depozycji w wątrobie i kościach (łącznie) oraz ok. 10 % w tkankach miękkich [40]. W przypadku wniknięcia plutonu drogą pokarmową ok. 0.05 % Pu w formie rozpuszczalnych związków i ok. 0,001 % Pu w formie nierozpuszczalnej trafia do układu krwionośnego. Pozostała część kompleksów Pu jest wydalana wraz z kałem [40]. Przyjmuje się, że czas połowicznego biologicznego zaniku Pu dla szkieletu wynosi ok. 50 lat a dla wątroby ok. 20 lat [39]. Na podstawie badań przeprowadzonych w latach 40 XX w. [41] oszacowano, że ok. 22 mg Pu, wstrzyknięte do organizmu człowieka, o masie ciała ok. 70 kg, z 50 % prawdopodobieństwem wywołałaby jego zgon w ciągu 30 dni ($LD_{50}(30)$). Dla drogi oddechowej, wielkość ta (masa zaabsorbowanego Pu) musiałaby być 4-ro krotnie większa [39]. W całej historii prac nad Pu, nie zarejestrowano przypadku zgonu człowieka spowodowanego wniknięciem tego pierwiastka. Pluton uznawany jest za jeden z najbardziej radiotoksycznych pierwiastków. Zasięg cząstek α w absorbencie powstałych w wyniku rozpadu jąder izotopów Pu, wynosi ok. 3 cm - 5 cm w powietrzu zaś w tkance żywej jedynie ok. 30 μm (3 - 5 średnic komórek)[39]. Niewielki zasięg i duży LET (Linear Energy Transfer) takich cząstek wiąże się z uszkodzeniami komórek znajdujących się w niewielkiej odległości od jądra Pu. Analizując szkodliwość izotopów plutonu trzeba uwzględnić także wysoką toksyczność chemiczną tego pierwiastka wynikającą z faktu, że jest on metalem ciężkim i wykazuje dodatkowe toksyczne działania związane z właściwościami chemicznymi.

Pluton jest pierwiastkiem posiadającym jedynie izotopy niestabilne. 6 spośród 25 znanych, zostało zebranych w tab. 1.10.

Pluton naturalny występuje w postaci ^{244}Pu oraz ^{239}Pu . ^{244}Pu został odkryty w minerałach bastnazytu prekambryjskiego przez Hoffmana et. al. w 1971 r. [42]. Jest on pozostałością po wybuchu supernowej i procesie tworzenia jąder pierwiastków ciężkich [43]. Natomiast, naturalny ^{239}Pu istniał w złożach U, z których największe znajduje się w Oklo na terenie Gabonu

Tablica 1.10: Zestawienie wybranych izotopów plutonu, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.

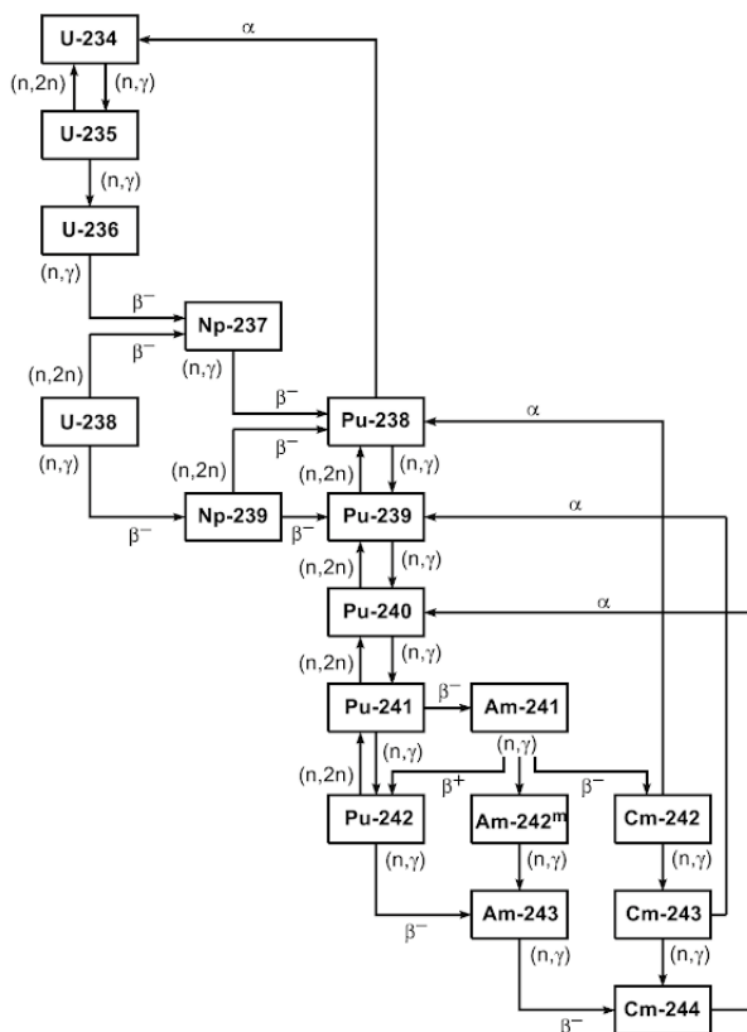
A	$T_{1/2}$	Typ rozpadu	E [keV]	I [%]
238	87,7 (1) y	α γ	5456.3 (3), 5499.03 (20) 43.498 (1), 99.853 (3)	28.98 (10), 70.91 (10) 0.0392 (8), 0.00729 (8)
239	24110 (30) y	α γ	5156.59 (14), 5144.3 (8), 5105.5 (8) 12.975 (10), 38.661 (2), 51.624 (1)	70.77 (14), 17.11 (14), 11.94 (7) 0.0341 (9), 0.01044 (13), 0.02722 (22)
240	6561 (7)	α γ	5123.68 (23), 5168.17 (15) 45.244 (2), 104.234 (6)	27.1 (1), 72.8 (1) 0.0447 (9), 0.00714 (9)
241	14.329 (29) y	α β^- γ	4852.9 (11) 99.998 (0) (E_{av}) 103.680 (5), 114.0, 148.567 (10)	0.000296 (5), 0.002038 (15) 20.78 (13) 0.0001012 (6), 0.000081 (2), 0.0001860 (14)
242	3.75E+5 (2) y	α γ	4756.2 (10), 4858.2 (10), 4902.3 (10) 44.915 (13), 103.50 (4)	0.0304 (14), 23.4 (6), 76.5 (6) 0.0384 (8), 0.0253 (12)
244	8.00E+7 (9) y	α γ	4546 (1), 4589 (1) 44 (2)	19.4 (8), 80.5 (8) 0.029 (8)

A-liczba atomowa, $T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania, I-prawdopodobieństwo emisji, E_{av} -energia średnia, liczby w nawiasach oznaczają niepewność

(Afryka). Około 2 miliardów lat temu, reakcja neutronów powstałych w wyniku spontanicznego rozszczepienia ^{235}U (koncentracja 10-krotnie większa niż obecna) z ^{238}U spowodowała powstanie ok. 4 t ^{239}Pu , które do czasów współczesnych uległy rozpadowi. Drugą możliwością powstania naturalnego ^{239}Pu jest reakcja ^{238}U z neutronami naturalnego tła promieniowania (niekoniecznie pochodzącymi z rozszczepienia ^{235}U) [44].

Najczęściej analizowanymi izotopami Pu, w kontekście awarii FDNPP są ^{238}Pu , ^{239}Pu oraz ^{240}Pu . Są to izotopy o różnych czasach połowicznego rozpadu i różnym pochodzeniu. ^{238}Pu , którego czas połowicznego zaniku wynosi 87.7 lat (tab. 1.10) powstaje m.in. w wyniku reakcji wychwyty neutronów w łańcuchu ^{235}U , ^{236}U i ^{237}Np lub mniej znaczącej reakcji $^{238}\text{U}(n,2n)^{238}\text{Pu}$ (rys. 1.12). Izotopy ^{239}Pu oraz ^{240}Pu o czasach połowicznego rozpadu wynoszących odpowiednio 24110 lat i 6561 lat, produkowane są w wyniku reakcji wysokoenergetycznych neutronów reaktorowych z ^{238}U oraz wychwyty neutronu przez jądro ^{239}Pu (rys. 1.12). Różne pochodzenie tych izotopów powoduje, że są one doskonałymi markerami procesów zachodzących w paliwie jądrowym reaktorów. Z kolei gdy zostaną uwolnione do środowiska (w sposób intencyjny lub nieintencyjny), ze względu na relatywnie długie czasy połowicznego rozpadu, mogą być znacznikami procesów środowiskowych.

Opracowania i przewidywania np.: dystrybucji Pu w środowisku lub chronologii depozycji Pu po awarii w FDNPP, przygotowuje się w oparciu o jeden z dwóch zestawów kombinacji izotopowych Pu tj. ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ lub ^{239}Pu i ^{240}Pu (bardzo rzadko używane są wszystkie izotopy razem). Taki dobór izotopowy jest konsekwencją wyboru metody pomiarowej, na której opierają się prowadzone analizy tj. odpowiednio spektrometrii promieniowania alfa lub spektrometrii mas. O ile prac związanych z ^{239}Pu i ^{240}Pu po awarii FDNPP jest więcej, o tyle w przypadku właśnie tej awarii zestaw ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ niesie z sobą więcej informacji (wg. autora), co zostanie poddane dyskusji w rozdz. 3. Aczkolwiek pamiętać należy, że informacje, które otrzymujemy wykorzystując i jeden, i drugi zestaw izotopów Pu mają charakter komple-

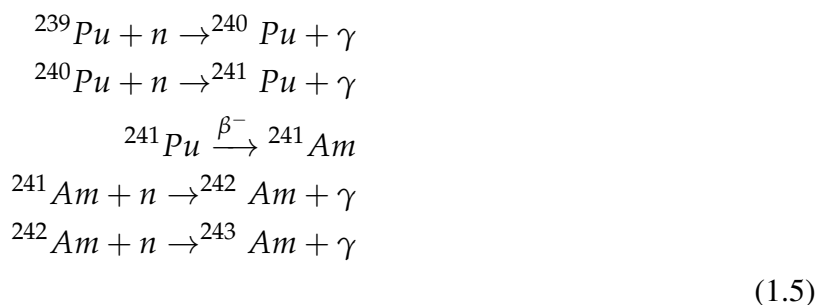


Rysunek 1.12: Fragment łańcucha izotopów powstających w wypalonym paliwie uranowym w wyniku wychwytu neutronów i rozpadów promieniotwórczych[45].

mentarny a nie wykluczający się. Izotop ^{238}Pu nie jest tak często raportowany jak ^{239}Pu i ^{240}Pu z uwagi na kilka faktów. Po pierwsze, zgodnie z tym co napisano wcześniej, do atmosfery zostało wyemitowane ok. 2 g Pu (rozd. 1.1.4) czyli bardzo niewielka ilość (w czasie awarii w Czarnobylu ok. 20 kg, tab. 1.13) stąd wniosek, że ślady izotopów Pu w środowisku po awarii FDNPP w postaci ich aktywności są niezwykle subtelne. Po drugie, stosowane metody pomiarowe mają ograniczenia tj. relatywnie wysokie limity detekcji spektrometrii promieniowania alfa dla ^{238}Pu (rzędu kilku mBq kg^{-1}) i długi czas pomiaru (rzędu kilka dni) oraz interferencje izobaryczne (np.: ^{238}U na ^{238}Pu [43]) uniemożliwiające oznaczenia ^{238}Pu w przypadku spektrometrii mas stosowanej do analiz próbek środowiskowych. Niemniej jednak, biorąc pod uwagę aktywności izotopów ^{239}Pu i ^{240}Pu zdeponowanych w środowisku Japonii przed awarią FDNPP (rozd. 1.3) oraz stosunki izotopowe Pu charakteryzujące reaktory FDNPP (na podstawie rozdz. 1.1.4), to właśnie ^{238}Pu w kombinacji z innymi izotopami Pu staje się tym najbardziej efektywnym markerem, zarówno procesów związanych z paliwem jądrowym jak i śladów FDNPP w środowisku.

1.2.4 Ameryk

Ameryk (transuranowiec), został odkryty przez grupę naukowców, w której skład weszli m.in. R.A. James, L.O. Morgan, A. Ghiorso, G.L. Seaborg. W laboratorium uniwersytetu w Chicago (USA), pod koniec roku 1944 i na początku 1945 r. przeprowadzono serię reakcji ^{239}Pu z neutronami reaktorowymi. Wśród produktów zidentyfikowano izotopy Am (rów.1.5) [46]. Ich odkrycie ogłoszono 11 listopada 1945 r. [47].



Am jest metalem o uboższej gamie struktur krystalicznych niż Pu (rys.1.10). Jego podstawowe właściwości chemiczne zostały zebrane w tab. 1.11.

Tablica 1.11: Zestawienie wybranych właściwości ameryku [7], [14].

Właściwości fizyczne	Ameryk
Liczba atomowa	95
Konfiguracja atomowa	$7s^2 5f^7$
Temperatura topnienia [K]	1265
Tempearatura wrzenia [K]	2880
Gęstość [g/cm^3]	13.67^1
Stopnie utlenienia	II ² , III, IV, V, VI, VII ²

¹ - maksymalna gęstość odmiany α , ² - Am na II i VII stopniu tworzy nietrwałe związki

Właściwości chemiczne ameryku w znaczący sposób różnią się od właściwości plutonu. W warunkach naturalnych ameryk występuje jedynie na III stopniu utlenienia.

Tablica 1.12: Zestawienie wybranych izotopów ameryku, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.

A	$T_{1/2}$	Typ rozpadu	E [keV]	I [%]
241	432.6 (6) y	α	5338, 5442.80 (13), 5485.56 (12)	1.66 (2), 13.1 (3), 84.8 (5)
		γ	26.3446 (2), 33.196 (1), 59.5409 (1)	2.27 (12), 0.126 (3), 35.9 (4)
243	7364 (22) y	α	5181 (1), 5233.3 (10), 5275.3 (10)	1.383 (7), 11.46 (5), 86.74 (5)
		γ	43.53 (2), 74.66 (2)	5.90 (15), 67.2 (12)

A-liczba atomowa, $T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania, I-prawdopodobieństwo emisji, liczby w nawiasach oznaczają niepewność

Badania prowadzone nad dystrybucją Am w organizmie człowieka po wchłonięciu go drogą oddechową pokazały, że $47.6 \pm 24.2\%$ (średnia \pm odchylenie standardowe (SD)) Am

zostało zdeponowane szkielecie, $3.3 \pm 1.7 \%$ w wątrobie, $10.0 \pm 5.9 \%$ w mięśniach [48]. Ze względu na rodzaj rozpadu i energię emitowanych cząstek α (tab. 1.12) ameryk, podobnie jak pluton, jest silnie radiotoksyczny natomiast z uwagi na właściwości chemiczne (metal ciężki) wykazuje wysoką toksyczność chemiczną.

Spośród 30 znanych izotopów Am (wszystkie niestabilne) 2 o najdłuższych czasach połowicznego zaniku zostały zestawione w tab. 1.12.

Ameryk naturalny podobnie jak pluton występował w złożach uranu (np. Oklo w Gabonie).

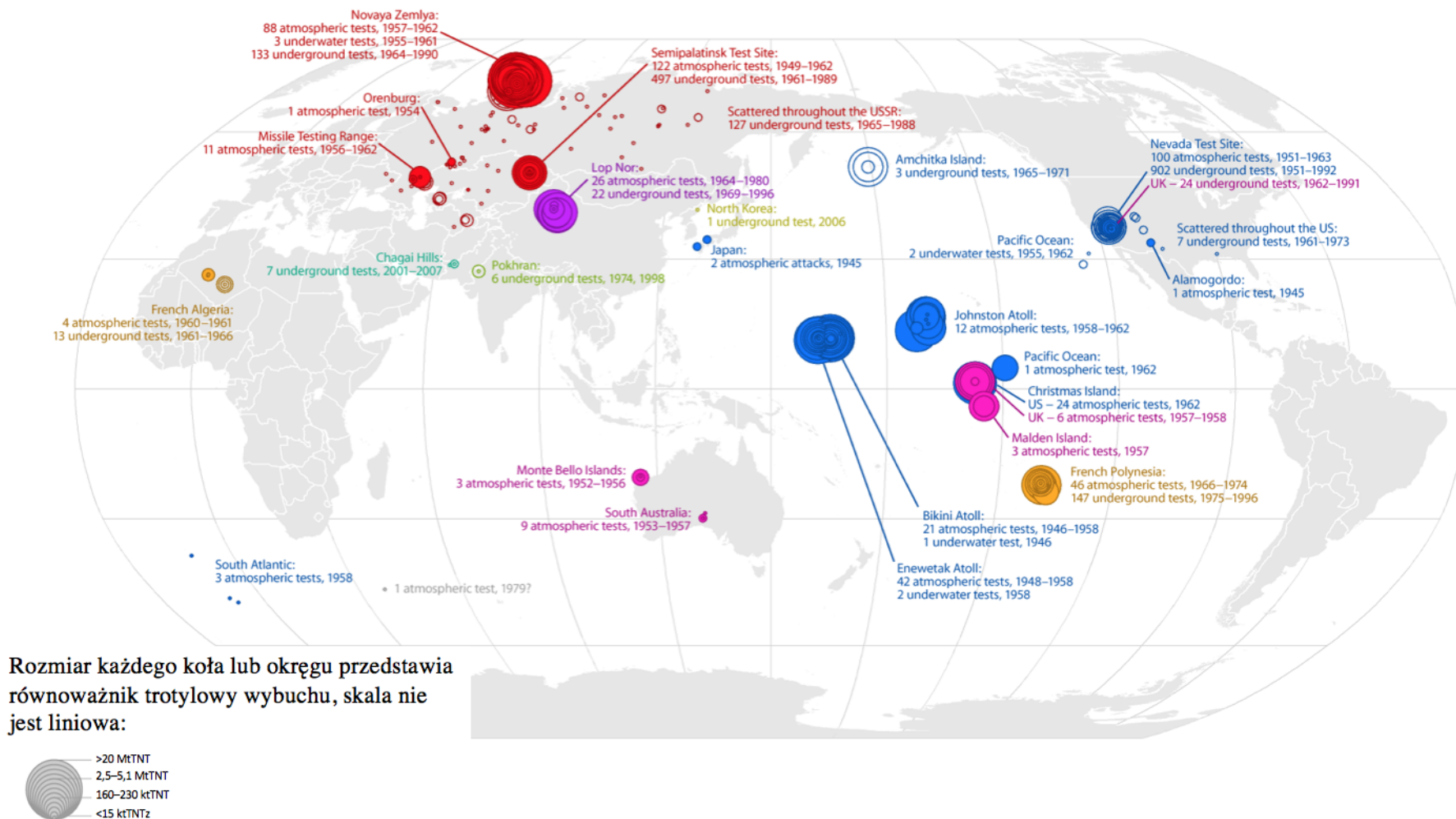
1.3 Źródła sztucznych izotopów promieniotwórczych w środowisku i ich identyfikacja

1.3.1 Antropogeniczne źródła izotopów promieniotwórczych

Działalność człowieka (intencyjna lub nieintencyjna) oraz znalezienie zastosowania dla wybranych pierwiastków lub izotopów (w oparciu o ich specyficzne właściwości) stały się przyczyną ich wprowadzenia i rozpowszechnienia w środowisku. Niewątpliwie największy wpływ na ten stan rzeczy miała i wciąż ma ich przydatność dla celów militarnych. Poniżej zostaną sklasyfikowane i omówione źródła izotopów promieniotwórczych, które mają globalnie istotny wkład w obecny stan środowiska, z jednoczesnym wyróżnieniem tych, które są ważne dla ekosystemów w Japonii.

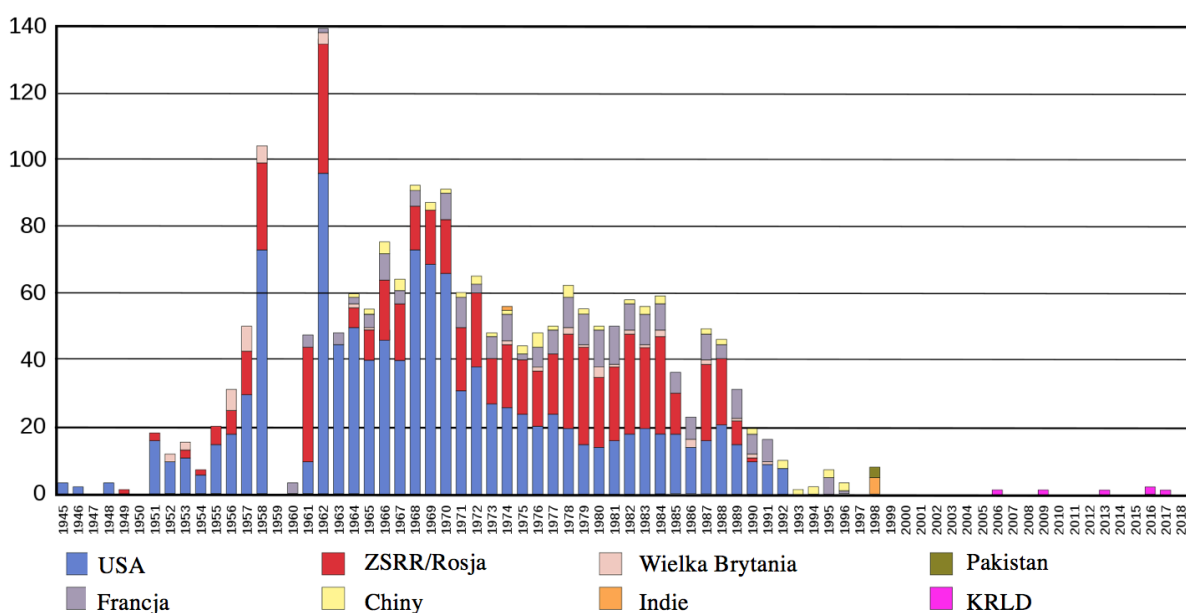
Testy broni jądrowej

16 lipca 1945 r. na pustyni Alamogordo w Nowym Meksyku (USA) przeprowadzono pierwszy test bomby jądrowej. Od tego dnia do dzisiaj wykonano łącznie 2058 testów [49] (liczba ta różni się w zależności od opracowań i przyjętych definicji, a także uwzględnia dwa ataki przeprowadzone z użyciem broni jądrowej na terenie Japonii) co sprawia, że jest to największe i najbardziej globalne antropogeniczne źródło izotopów promieniotwórczych w środowisku. Próby jądrowe zostały przeprowadzone przez 8 państw, z czego najwięcej przez USA tj. 1032 (pierwsza 16.07.1945, ostatnia 23.09.1992, wliczając w to dwa ataki na terytorium Japonii), 715 przez ZSRR/Rosję (pierwsza 29.08.1949, ostatnia 24.10.1990), 210 przez Francję (pierwsza 13.02.1960, ostatnia 17.10.1996), 45 przez Wielką Brytanię (pierwsza 3.10.1952, ostatnia 26.11.1991), 45 przez Chiny (pierwsza 16.10.1964, ostatnia 29.07.1996), 3 przez Indie (pierwsza 18.05.1974, ostatnia 13.05.1998), 2 przez Pakistan (pierwsza 28.05.1998, druga 30.05.1998) oraz w XX w. 6 przez Koreańską Republikę Ludowo - Demokratyczną (KRLD) (pierwsza 9.10.2006, ostatnia 3.09.2017) [50].



Rysunek 1.13: Miejsca testów i ataków z użyciem broni jądrowej na świecie [51], [52].

Testy jądrowe odbywały się w ponad 60 lokalizacjach (rys. 1.13) w tym: na pustyni w Nowej Zelandii, USA (ponad 900 testów), w okolicach Semipałatyńska (Kazachstan), ZSRR (ponad 450 testów), na Pacyfiku: 1. atol Mururoa i Fangataufa, Polinezja Francuska (ponad 190 testów), 2. wyspy Marshalla i atol Johnston, USA, Wyspa Bożego Narodzenia, Australia (ponad 100 testów) oraz na Nowej Ziemii, ZSRR (ponad 130 testów), w Lop Nur, Chiny (45 testów), w Algierii (17 testów), w zachodniej i południowej Australii (12 testów), w KRLD (6 testów) [49]. Intensywność testów jądrowych wyraźnie wzrosła w czasie kryzysu i eskalacji zimnej wojny (rys. 1.14). Podpisanie traktatu o całkowitym zawieszeniu prób z użyciem broni jądrowej (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty - CTBT) 24.09.1996 przez USA, Chiny, Francję, Wielką Brytanię i Rosję oraz 66 innych krajów, w zdecydowany sposób ograniczyło liczbę testów (po podpisaniu traktatu przeprowadzono 10 prób). Miejsca testów położonych na Pacyfiku tj. m.in. na wyspach Marshalla (atol Bikini i Enewetak), które zostały przeprowadzone przez USA w latach 1946 - 1962 otrzymały specjalną nazwę Pacific Proving Grounds (PPG).

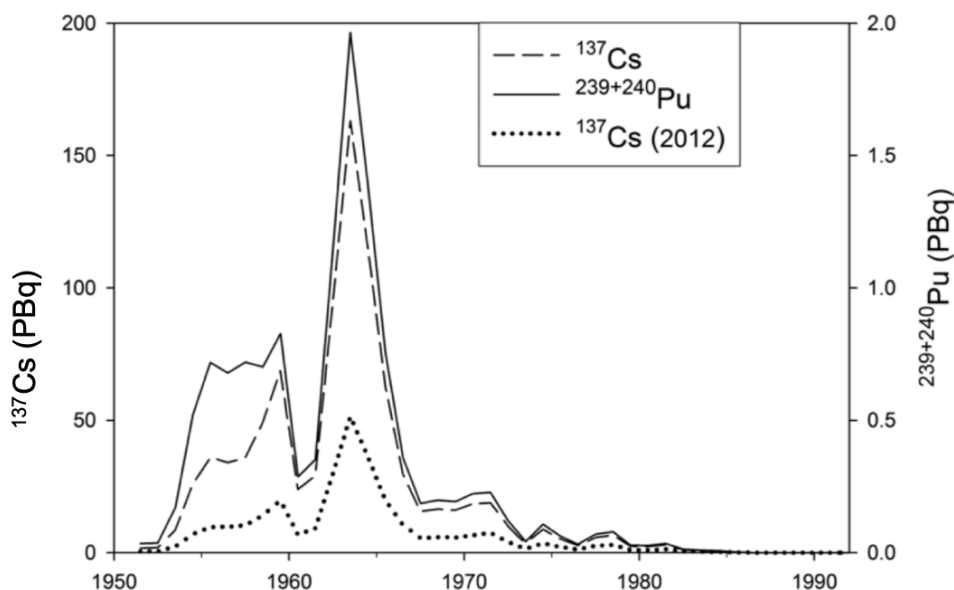


Rysunek 1.14: Zestawienie testów i ataków z użyciem broni jądrowej w czasie [53].

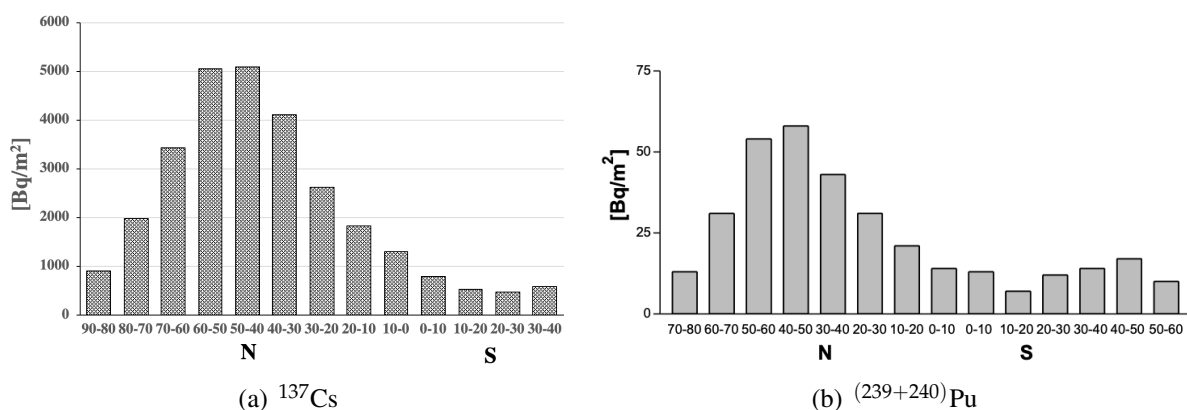
Nie wszystkie próby jądrowe miały przeznaczenie militarne. Część z nich (151 testów) zostało przeprowadzonych w ramach programu Peaceful Nuclear Explosion (PNEs) i miały zastosowanie cywilne takie jak np.: gaszenie palących się szybów naftowych, tworzenie zbiorników wodnych, kanałów i podziemnych jaskiń.

Z punktu widzenia globalnego skażenia środowiska, największe znaczenie miały eksplozje przeprowadzone w atmosferze (ok. 25 % łącznej liczby wszystkich testów, czyli powyżej 500) w tym na dużych wysokościach tj. od 40 km do 540 km nad powierzchnią ziemi (tj. od górnej stratosfery do jonosfery - testy w przestrzeni kosmicznej). Przyjmuje się, że materiał jądrowy pochodzący z tych testów w 76 % trafił do stratosfery, w 8.5 % do troposfery zaś 15% zostało zdeponowane lokalnie [54]. Ograniczenie liczby testów atmosferycznych, podwodnych i w przestrzeni kosmicznej nastąpiło wraz z zawarciem traktatu w Moskwie, dnia 5 sierpnia 1963 r. (Partial Test Ban Treaty), pomiędzy: ZSRR, Wielką Brytanią i USA. Ani Francja ani Chiny nigdy nie podpisały porozumienia i formalnie nie zaprzestały prób jądrowych (46 i 23 testy atmosferyczne odpowiednio po 1963 r. [50]) we wskazanych ośrodkach. Niechcianym ale częstym następstwem podziemnych testów jądrowych były uwolnienia radionuklidów do śro-

dowiska poprzez pojawiające się w wyniku eksplozji nieszczelności w instalacjach [50]. Oszacowano, że w wyniku testów jądrowych przeprowadzonych do 1979 r. do środowiska zostało uwolnione ok. 70 EBq ^{131}I (ok. 15 kg), 910 PBq ^{137}Cs (ok. 280 kg) oraz 1.4 PBq Pu tj.: 0.33 PBq ^{238}Pu (ok. 0.52 kg), 7.4 PBq ^{239}Pu (ok. 3.2 tony), 5.2 PBq ^{240}Pu (ok. 0.62 tony), 140 PBq ^{241}Pu (ok. 44 kg), 0.016 PBq ^{242}Pu (ok. 110 kg) [55]. Opadający materiał powstały w wyniku eksplozji jądrowych spowodował skażenie całej kuli ziemskiej (rys. 1.15), jednak nie w sposób równomierny. Ze względu na położenie geograficzne poligonów nuklearnych oraz cyrkulacje atmosfery (brak mieszania się powietrza znad półkuli północnej i południowej - model komórek cyrkulacyjnych: komórka podbiegunowa, komórka Ferrela i komórka Hadleya [56]) półkula północna została bardziej skażona izotopami promieniotwórczymi niż półkula południowa (rys. 1.16). Przyjmuje się, że ok. 90 % uwolnionych do środowiska izotopów promieniotwórczych zostało zdeponowanych na półkuli północnej i ok. 10 % na półkuli południowej [57].



Rysunek 1.15: Depozycja ^{137}Cs oraz $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ na powierzchni kuli ziemskiej w następstwie testów broni jądrowej w funkcji czasu [58].



Rysunek 1.16: Średnia akumulowana depozycja (a) ^{137}Cs (na podstawie [59]), (b) $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ [44] na powierzchni kuli ziemskiej w funkcji szerokości geograficznej po testach broni jądrowej.

Hiroshima, Nagasaki (1945)

W historii miały miejsce 2 ataki militarne z użyciem broni jądrowej i w obydwu wykorzystane bomby zostały zrzucone na terytorium Japonii. Bardzo często te dwa przypadki zaliczane są do statystyki testów broni jądrowej chociaż wcale nimi nie były.

Pierwszy atak został przeprowadzony 6 sierpnia 1945 r. o godz. 8:15 (JST), z użyciem "bomby uranowej", tj. bomby, w której materiałem rozszczepialnym był ^{235}U (Little Boy, Hiroshima A-bomb). Masa użytego U wynosiła 64 kg. Eksplozja bomby nastąpiła 580 m nad powierzchnią ziemi a 20 - 30 minut później w północno - zachodniej części miasta Hiroshima zaobserwowano trwający ok. godziny opad tzw. „czarnego deszczu” (black rain) zawierającego U oraz produkty rozszczepienia ^{235}U . Na podstawie analizy mocy wybuchu (12.5 kt) oszacowano, że rozszczepieniu uległo ok. 0.7 kg ^{235}U , zaś reszta materiału została rozproszona w atmosferze i środowisku lądowym [60].

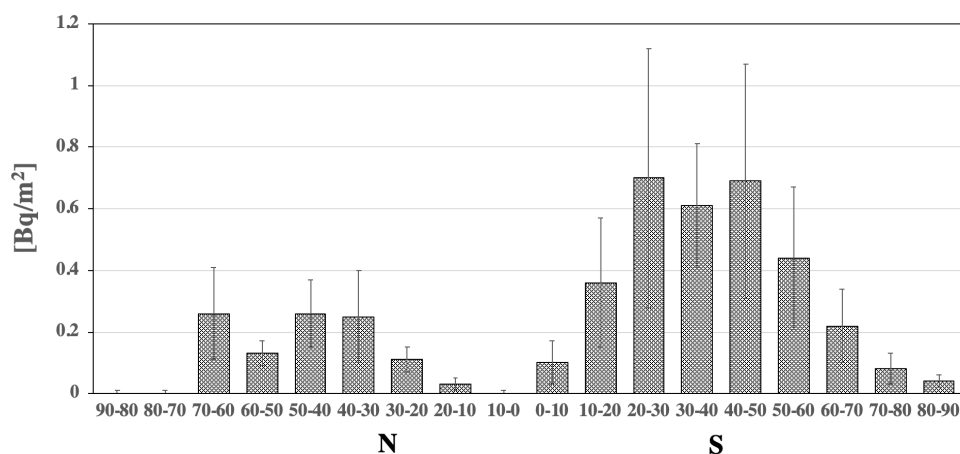
Trzy dni po pierwszym ataku nastąpił drugi. 9 sierpnia 1945 r. o godz. 11:02 (JST) zrzucono bombę (Fat Man, Nagasaki A-bomb), w której Pu wykorzystano jako materiał rozszczepialny. Przyjmuje się, że masa użytego Pu mieściła się pomiędzy 5 kg a 15 kg (dana niedostępna publicznie), przy czym ok. 95.5 % stanowił ^{239}Pu a resztę ^{240}Pu [61]. Eksplozja nastąpiła na wysokości 503 m nad poziomem ziemi. W czasie wybuchu doszło do rozszczepienia jedynie 1.2 kg Pu (0.003 PBq) w wyniku czego powstało ok. 23.2 g ^{137}Cs (0.074 PBq). Materiał konstrukcyjny bomby, jak i ten „zassany” z powierzchni ziemi (konsekwencja generacji dużej ilości ciepła podczas eksplozji) został wyniesiony nawet do wysokości 5 000 m n.p.m - 7 000 m n.p.m (górną partia troposfery) [62]. 20 minut po wybuchu na terenie położonym 3 km na wschód od hipocentrum (wschodnia część Nagasaki) doszło do opadu „czarnego deszczu” zawierającego produkty rozszczepienia oraz sam $(^{239+240})\text{Pu}$. Z uwagi na wyniesienie materiału konstrukcyjnego bomby oraz produktów rozszczepienia do wyższych warstw troposfery i znalezienie śladów tego zdarzenia w materiałach środowiskowych np. w Arktyce [62], eksplozję tą można traktować zarówno jako lokalne jak i globalne źródło sztucznych izotopów promieniotwórczych w środowisku.

Wypadki z udziałem satelitów

W latach 1964 - 1983 sześć satelitów wyposażonych w radioizotopowe źródła zasilania uległo zniszczeniu podczas procedury startu lub ponownego wejścia w atmosferę [63], [64]. W przypadku trzech nie zanotowano rozszczelnienia i uwolnienia radionuklidów do środowiska (odzyskane lub zatopione w morzu), dwa z trzech pozostałych uległy spaleni w atmosferze (SNAP 9A, Kosmos - 1402) a ostatni częściowej lub całkowitej dezintegracji (Kosmos - 954).

a) SNAP 9A (1964)

21 kwietnia 1964 r. amerykański nawigacyjny satelita Transit 5-BN-3 wyposażony w radioizotopowy generator termoelektryczny (RTG) SNAP 9A (System for Nuclear Auxiliary Power Generator) uległ spaleni w stratosferze na wysokości ok. 50 km nad półkulą południową (rejon Oceanu Indyjskiego - Madagaskar). W wyniku tego wypadku w stratosferze uległo rozproszeniu ok. 1 kg ^{238}Pu (630 TBq). Przyjmuje się, że do połowy lat 70 XX w. 95 % uwolnionego wówczas Pu uległo depozycji na powierzchni ziemi. Badania pokazały, że stosunek depozycji ^{238}Pu pochodzącego ze SNAP 9A na półkuli północnej i południowej wynosi ok. 20 : 80 (rys. 1.17) [65].



Rysunek 1.17: Średnia akumulowana depozycja ²³⁸Pu na powierzchni kuli ziemskiej w funkcji szerokości geograficznej po wypadku z udziałem satelity SNAP 9A, na rok 1973 (na podstawie [65]).

b) Kosmos - 954 (1978)

W styczniu 1978 r. (dokładna data nie jest znana) radziecki satelita Kosmos - 954 wyposażony w reaktor jądrowy uległ zniszczeniu w trakcie wchodzenia w atmosferę. Do wypadku doszło nad północnym terytorium Kanady na wysokości ok. 40 km. Badania szczątków satelity pozwoliły ustalić, że paliwem jądrowym był U o wzbogaceniu 90 % [66]. Przyjmuje się, że w wyniku wypadku do środowiska oprócz U zostało wprowadzone ok. 0.2 PBq ¹³¹I, 0.003 PBq ¹³⁷Cs i niewielka ilość ²³⁹Pu ($5.9 \pm 0.6 \cdot 10^{-9}$ g g⁻¹ U) [63].

c) Kosmos - 1402 (1983)

W lutym 1983 r. oddzielona część radzieckiego satelity z reaktorem wchodząc w ziemską atmosferę uległa spaleni na wysokości ok. 76 km nad południową częśćią Oceanu Atlantyckiego. W reaktorze znajdowało się ok. 50 kg ²³⁵U. Ślady tego zdarzenia (²³⁵U i (²³⁹⁺²⁴⁰)Pu) zostały znalezione w stratosferze jak i opadzie atmosferycznym na północnej półkuli [64], [67].

Awarye jądrowe

W historii rozwoju przemysłu jądrowego dochodziło do awarii zarówno w instalacjach cywilnych jak i militarnych. Największe znaczenie dla ludności i środowiska, miały awarye w ośrodkach takich jak: Mayak, ZSRR (1957), Windscale, Wielka Brytania(1957), Three Mile Island, USA (1979), Czarnobyl, ZSRR/Ukraina (1986) oraz Fukushima, Japonia (2011). Ze względu na położenie geograficzne ośrodków jądrowych oraz zasięg skażenia powstałego w wyniku awarii, omówione zostaną 2 zdarzenia, które mogłyby mieć wpływ (choć niewielki) na stan środowiska w Japonii tj. awaria w: Three Mile Island i Czarnobylu. Dla pełnego obrazu sytuacji należy dodać, że również na terenie samej Japonii dochodziło do zdarzeń radiacyjnych, z których najpoważniejsze miało miejsce w Tokaimura, prefektura Ibaraki w 1999 r. W trakcie przygotowywania m.in. paliwa do testowego reaktora prędkiego chłodzonego sodem (nisko wzbogacony uran, ok. 19 %) doszło do przekroczenia masy krytycznej U. Zdarzenie zostało sklasyfikowane na poziomie 4 skali INES a jego skutki miały bardzo lokalny charakter (śmierć dwóch pracowników technicznych, skażenie ogółu pracowników, skażenia wnętrza budynku, uwolnienie frakcji lotnej izotopów powstałych w czasie rozszczepienia) [68].

a) Three Mile Island

Elektrownia jądrowa Three Mile Island położona jest na sztucznej wyspie 16 km od miasta Harrisburg w stanie Pensylwania, USA. W jej skład wchodziły 2 reaktory (TM-1 (786 MW(e)), TM-2 (900 MW(e))) typu PWR (Pressurized Water Reactor). Dnia 28 marca 1979 r. przy pracy reaktora TM-2 na poziomie 97 % mocy doszło do uszkodzenia turbiny na skutek zmniejszenia dopływu wody do generatora pary wodnej (obieg wtórny). To z kolei zakłóciło proces odprowadzania ciepła z pierwotnego układu chłodzenia a następnie wzrost ciśnienia w reaktorze. W tej sytuacji, doszło do automatycznego otwarcia ciśnieniowego zaworu bezpieczeństwa oraz wyłączenia TM-2 (wprowadzenie prętów kontrolnych do rdzenia). Gdy ciśnienie zmalało zawór nie zamknął się automatycznie. Ta nieprawidłowość oraz brak cyrkulacji wody w pierwotnym układzie chłodzenia, doprowadziły do szybkiej utraty chłodziwa (parowanie), co z kolei zaowocowało odsłonięciem prętów paliwowych i stopieniem w ok. 45 % rdzenia reaktora. Konsekwencją awarii było skażenie wnętrza budynku reaktora i uwolnienie do środowiska stosunkowo niewielkiej ilości gazów szlachetnych, głównie ^{133}Xe (370 PBq), ^{85}Kr (1.3 PBq) oraz ^{131}I (550 GBq) do atmosfery. Natomiast awaria ta, w przeciwieństwie np. do zdarzenia w Tokaimura nie przyniosła ofiar śmiertelnych [63], [69].

b) Czarnobyl

W 1986 r. w elektrowni jądrowej w Czarnobylu, położonej na terenie byłego ZSRR (obecnie Ukraina), doszło do awarii. W skład elektrowni, oddalonej o 18 km od miasta Prypeć, wchodziły 4 reaktory typu RBMK (Реактор Большой Мощности Канальный). W nocy 26 kwietnia w reaktorze nr. 4 przeprowadzono eksperyment z awaryjnym zasilaniem urządzeń bloku energią elektryczną z generatora reaktora, z którego zasilane były również pompy cyrkulacyjne obiegu pierwotnego. To spowodowało zmniejszenie szybkości przepływu wody przez kanały paliwowe, czego następstwem był wzrost temperatury i mocy reaktora (kilkusetkrotnie). W konsekwencji doszło do dwóch wybuchów (chemicznych), które „rozwały” betonową obudowę (budynek) reaktora, doprowadzając równocześnie do „zrzućenia” ważącej ok. 2 000 t betonowej pokrywy o grubości ok. 6 m. Ekspozycja grafitowego moderatora na powietrze, doprowadziła do jego samozapłonu i pożaru. Paliwo uranowe, wewnątrz kanałów, uległo stopieniu a rdzeń destrukcji.

Te warunki spowodowały uwolnienie ogromnych ilości izotopów promieniotwórczych do atmosfery (tab. 1.13), nie tylko w formie gazowej czy też drobnych aerozoli ale też gorących cząstek będących fragmentami rdzenia (nawet 10 - 15 μm). Przyjmuje się, że 60 % - 70 % uwolnionych izotopów zostało zdeponowane na terenie obecnej Białorusi [71]. Izotopowe ślady tej awarii były obserwowane na całej półkuli północnej.

Tablica 1.13: Zestawienie aktywności i mas wybranych izotopów uwolnionych do atmosfery w czasie awarii w Czarnobylu [70].

Izotop	T1/2	A [Bq]	m [kg]
^{85}Kr	10.739 y	3.30E+16	2.3
^{133}Xe	5.2475 d	6.50E+18	0.94
^{131}I	8.0252 d	1.80E+18	0.39
^{132}Te	3.204 d	1.20E+18	0.11
^{134}Cs	2.0652 y	1.90E+17	4.0
^{136}Cs	13.16 d	5.40E+16	0.020
^{137}Cs	30.08 y	8.50E+16	26
^{238}Pu	87.7 y	3.50E+13	0.055
^{239}Pu	24110 y	3.00E+13	13
^{240}Pu	6561 y	4.20E+13	5.0
^{241}Pu	14.329 y	6.00E+15	1.6
^{242}Cm	162.8 d	9.00E+14	0.0073

1.3.2 Identyfikacja źródeł promieniotwórczych

Każde źródło promieniotwórcze nosi w sobie sygnaturę, która jest certyfikatem/dowodem jego pochodzenia. Ta sygnatura to stosunki aktywności lub mas konkretnych izotopów. Ich kompozycja jest odzwierciedleniem procesów i materiałów, z których źródła powstawały. W tab. 1.14 zostały zebrane stosunki aktywności izotopów źródeł, które miały wpływ na środowisko Japonii przed awarią w FDNPP.

Tablica 1.14: Zestawienie stosunków aktywności $^{238}\text{Pu}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$, $^{137}\text{Cs}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$ oraz $^{241}\text{Am}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopów promieniotwórczych w środowisku.

Źródło promieniotwórcze	$^{238}\text{Pu}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$	$^{137}\text{Cs}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$
Nagasaki	0.041 - 0.044 [72], [73]	1.86 ± 0.32 [73]	0.049 ± 0.002 [73]
PPG	0.001-0.15 [72], [74]	0.13 ± 0.04 [74]	0.35 - 0.87 [74]
*Testy broni jądrowej (do 1964)	0.014 - 0.021 [75]	20.2 ± 3.5 [76]	0.44 ± 0.10 [77]
*Testy broni jądrowej + SNAP 9A	0.021 - 0.031 [75]		
Testy broni jądrowej + SNAP 9A - Japonia	0.037 [78]	31.3 [78]	
Czarnobyl	0.33 - 0.38 [75], [77]	6.2 - 52 [79]	2.1 ± 0.2 [77]
Czarnobyl - Japonia	0.13 [80]	27,000 - 620,000 [80]	

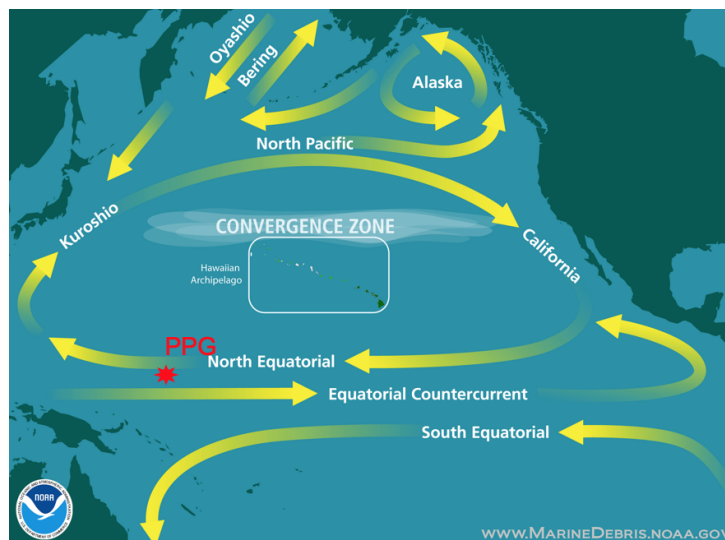
Wartości stosunków aktywności przeliczone na 2011 r. * wartości stosunków dla półkuli północnej

W tabeli nie uwzględniono danych dotyczących ^{131}I oraz ^{134}Cs ze względu na ich relatywnie krótkie czasy połowicznego zaniku. Izotopy te były nieoznaczalne jako pozostałość wymienionych w tabeli źródeł w 2011 r.

W roku 1945 dokonano na terenie Japonii dwóch ataków militarnych z użyciem broni jądrowej. Niestety, skomposć danych charakteryzujących atak jądrowy w Hiroshima nie pozwalała na opisanie go w sposób zaprezentowany w tab. 1.14.

Testy PPG zostały ujęte w dwóch punktach tabeli tj.: wyróżnione jako oddzielne źródło oraz zaliczone do testów broni jądrowej. Decyzja o takiej systematyce została podjęta na

podstawie analizy położenia Japonii. Miejsca testów PPG oprócz poligonów w KRLD i Chinach (Lop Nor) to najbliższej Japonii położone miejsca wybuchów jądrowych (w liczbie ok. 100) zarówno atmosferycznych jak i podwodnych [81]. Uwolnione izotopy promieniotwórcze mogły zostać przeniesione na teren Japonii zarówno w postaci opadu atmosferycznego jak i drogą morską. Miejsca PPG są opływane przez Prąd Północnorównikowy (North Equatorial Current), który daje początek Prądowi Kuro Siwo (Kuroshio Current) opływającemu wyspy japońskie od strony wschodniej (rys. 1.18). Bezpośredni kontakt skażonej wody morskiej z ekosystemem lądowym jak i zjawisko „sea spray” (powstawania aerozoli marygenicznych w wyniku współdziałania ze sobą atmosfery i morza [82]), mogły sprawić, że sygnatury PPG pojawiły się na terenie Japonii. Sygnatury te w znaczący sposób odbiegają od stosunków aktywności wybranych izotopów ze wszystkich testów jądrowych (atmosferycznych). Jest to wynik dwóch cech: typu bomby i mocy wybuchu jądrowego. Konstrukcja bomby termojądrowej (bomba wodorowa, H - bomb), w której inicjatorem reakcji syntezy trytu i deuteru jest promieniowanie elektromagnetyczne (X i γ) oraz strumień neutronów (pochodzące z reakcji rozszczepienia ładunku jądrowego: ^{235}U lub ^{239}Pu), sprzyja multiplikowaniu reakcji jądrowych. Intensywniejszy, niż w przypadku bomby jądrowej, strumień neutronów (wynik reakcji jądrowych) umożliwia ich sekwencyjny wychwyty np.: przez istniejące jądra Pu, powodując tym samym produkcję większej ilości izotopów Pu o wyższej liczbie masowej (rozdz. 1.2.3., rozdz. 3.1.1. rys. 1.12). Testy PPG to ok. 100 % mocy wszystkich wybuchów atmosferycznych przeprowadzonych przez USA [54]. Dwa najbardziej znaczące testy to Ivy Mike (1952 r.) - pierwszy test z bombą termojądrową oraz Castle Bravo (1954 r.) - największy test atmosferyczny przeprowadzony przez USA.



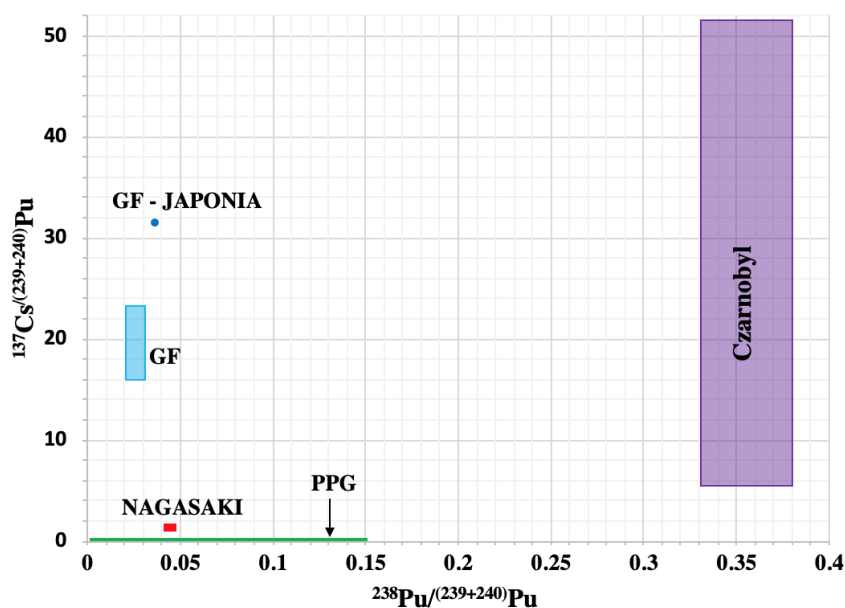
Rysunek 1.18: Układ prądów morskich na północnym Pacyfiku i usytuowanie miejsca PPG [83].

Kategoria „Testy broni jądrowej” w tab. 1.14 ma aż trzy rozwinięcia. Związane jest to chronologią zdarzeń oraz tak jak wyżej, umiejscowieniem geograficznym Japonii w kontekście miejsc uwolnień radionuklidów. Jeśli chodzi o koincydencje czasowe to niewątpliwie ważnym rokiem (oprócz 1945 r.) był 1964 r. Katastrofa satelity SNAP 9A, w wyniku której do środowiska zostało uwolnione dwa razy więcej ^{238}Pu niż podczas wszystkich testów broni jądrowej, wyraźnie zmieniła stosunek ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ (tab. 1.14) na obu półkulach. Dlatego też zdecydowano o przedstawieniu wyników zarówno przed jak i po katastrofie. Położenie geograficzne Japonii zadecydowało, że te same zdarzenia miały nieco inny obraz izotopowy niż ten

rejestrwany w innych miejscach na kuli ziemskiej. Stąd też w tabeli znalazł się punkt „Testy broni jądrowej + SNAP 9A - Japonia”. Są to referencyjne wyniki opadu atmosferycznego zebranego na terenie całej Japonii w latach 1963 - 1979, który został przygotowany jako materiał referencyjny. Dla potrzeb niniejszej pracy, ślady testów broni jądrowej oraz katastrofy satelity SNAP 9A będą nazywane opadem globalnym (global fallout - GF).

Czarnobyl oddalony jest o ok. 8 000 km od Japonii. Ślady awarii z 1986 r. zostały zaobserwowane w Japonii, chociaż stosunki izotopowe znacznie różniły się od tych, które zostały zdefiniowane w Europie (tab. 1.14). Najbardziej jest to widoczne w przypadku stosunku ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$, i wynika to m.in. z właściwości chemicznych i fizycznych pierwiastków (lotności tab. 1.7, 1.9) czy wielkości uwolnionych aerozoli.

Na rys. 1.19 i 1.20 przedstawiono wykresy, które pokazują wzajemne ułożenie zakresów limitujących dane źródła.



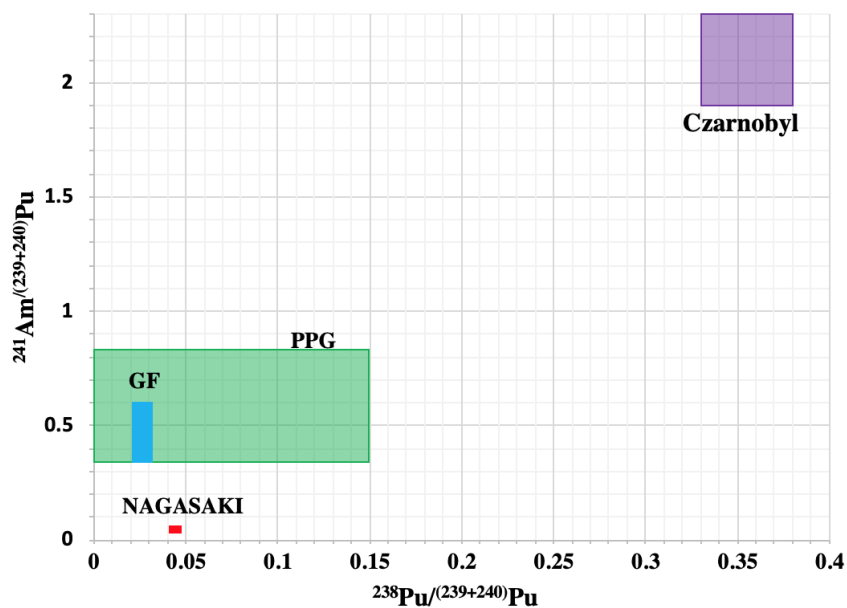
Rysunek 1.19: Zależność stosunków aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych. Wartości stosunków aktywności przeliczone na 2011 r.

Wymienione w tab. 1.14 antropogeniczne źródła izotopowe są łatwo rozróżnialne z wyjątkiem jednej sytuacji tj. zależności stosunku aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ kiedy to GF całkowicie mieści się w zakresie PPG. Wiąże się to z tym, że na podstawie tylko takiej zależności nie będzie można właściwej identyfikacji źródła pochodzenie radionuklidów.

Ze względu na niedostępność danych dotyczących ^{241}Pu , nie dla każdej pozycji „Źródło promieniotwórcze” z tab. 1.14 można było oszacować stosunek aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ na rok 2011. W przypadkach kiedy było to możliwe wykorzystano przekształconą zależność 1.6.

$$N_{Am} = \frac{\lambda_{Pu}}{\lambda_{Am} - \lambda_{Pu}} N_{0Pu} (e^{-\lambda_{Pu}t} - e^{-\lambda_{Am}t}) + N_{0Am} e^{-\lambda_{Am}t} \quad (1.6)$$

gdzie: N_{Am} - liczba jąder ^{241}Am po czasie t , N_{0Pu} i N_{0Am} - początkowa liczba jąder ^{241}Pu i ^{241}Am , λ_{Pu} , λ_{Am} - stałe rozpadu odpowiednio ^{241}Pu i ^{241}Am .



Rysunek 1.20: Zależność stosunków aktywności ^{241}Am i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych. Wartości stosunków aktywności przeliczone na 2011 r.

1.4 Charakterystyka wybranych metod spektrometrycznych

Do przygotowania wyników badań własnych w niniejszej pracy, zostały wykorzystane przede wszystkim spektrometria promieniowania alfa, gamma oraz spektrometria całego ciała, które poniżej zostaną lapidarnie omówione zaś szczegółowe dane dotyczące używanych w trakcie prac układów spektrometrycznych zostaną przedstawione w odpowiednich podrozdziałach rozdziału „Badania własne”.

1.4.1 Spektrometria promieniowania alfa

Spektrometria promieniowania alfa to metoda radiometryczna mająca szerokie zastosowanie w wielu dziedzinach nauki. Jej niewątpliwymi zaletami są: możliwość identyfikacji szerokiej gamy radionuklidów emitujących promieniowanie alfa w zakresie 1.5 MeV - 10 MeV [84], bardzo duża czułość (łatwe do osiągnięcia limity detekcji izotopów na poziomie 1 mBq na próbkę), niskie tło rzędu 10^{-5} cps - 10^{-6} cps, wewnętrzna wydajność rejestracji cząstek alfa na poziomie 100 % (co powoduje, że wydajność pomiaru zdominowana jest przez geometrię pomiaru), eliminacja konkurencyjnego promieniowania w podobnym zakresie energetycznym, emitowanego przez izotopy innych pierwiastków (separacja pierwiastków przed przygotowaniem źródła alfa -spektrometrycznego), mała wrażliwość na promieniowanie beta i gamma.

Spektrometria promieniowania alfa została stworzona w oparciu o własności fizyczne cząstek alfa, powstających w wyniku samorzutnej przemiany jądrowej, opisywanej regułą przesunięć Soddy’ego - Fajansa:



przy spełnieniu zasady zachowania: masy, pędu, energii, krętu, parzystości, liczby barionowej i leptonowej. Energia kinetyczna emitowanych cząstek alfa wynosi:

$$E_{\alpha} = Q \left(1 - \frac{1}{1 + \frac{M_Y}{m_{\alpha}}} \right) \quad (1.8)$$

gdzie: E_{α} - energia kinetyczna cząstki alfa w układzie laboratoryjnym, M_Y - masa jądra odrzutu, m_{α} - masa cząstki alfa, Q - energia rozpadu, szacowana na podstawie poniższego równania (zasada zachowania masy i energii):

$$Q = [M_X - M_Y - m_{\alpha}]c^2 \quad (1.9)$$

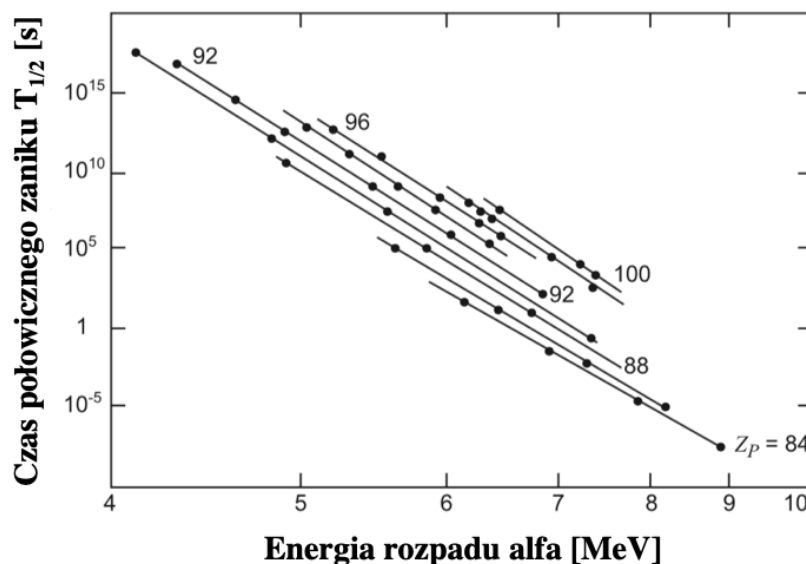
gdzie: M_X - masa jądra, które uległo rozpadowi, M_Y - masa jądra odrzutu, m_{α} - masa cząstki alfa.

Ponieważ masy produktów rozpadu są zdecydowanie różne ($M_Y \gg m_{\alpha}$) energia kinetyczna cząstki alfa jest praktycznie równa energii rozpadu alfa, która mieści się w granicach 2 MeV - 9 MeV [85]. Rozpad alfa jest głównym typem przemiany dla jąder charakteryzujących się nadmiarem protonów i relatywnie dużą liczbą atomową, a jego teoria została opracowana przez G.Gamowa i opublikowana w 1928 r. [86]. Wcześniejsze badania nad tym typem przemiany ujawniły bardzo silną zależność pomiędzy energią cząstek alfa i czasem połowicznego zaniku macierzystych jąder, co zostało zawarte w empirycznej formule Geigera - Nutalla z 1911 r.:

$$\log T_{1/2} = A + B \frac{1}{\sqrt{Q}} \quad (1.10)$$

przy założeniu: $T_{1/2}$ - czas połowicznego zaniku danego izotopu, A , B - stałe charakteryzujące dany pierwiastek.

Z powyższego równania wynika, że izotopy o wyższej energii cząstek alfa charakteryzują się krótszymi czasami połowicznego zaniku (rys.1.21).



Rysunek 1.21: Zależność czasu połowicznego zaniku od energii cząstek alfa emitowanych podczas rozpadu [87].

Bardziej wnikliwe badania ujawniły niewielkie odstępstwa od przedstawionych zależności dla niektórych izotopów Po [88].

Cząstki alfa oddziałują z materią podobnie jak inne ciężkie cząstki naładowane (protony, deuterony, lekkie jądra, etc.). Najważniejszym typem oddziaływań są nieelastyczne zderzenia cząstek alfa z elektronami atomów, w wyniku czego dochodzi do jonizacji atomów ośrodka. Teoria oddziaływania cząstek naładowanych z materią pozwala na obliczenie straty energii cząstki, przypadającej na jednostkę drogi w ośrodku/absorbencie i dla cząstek nierelatywistycznych wyraża się ona zależnością:

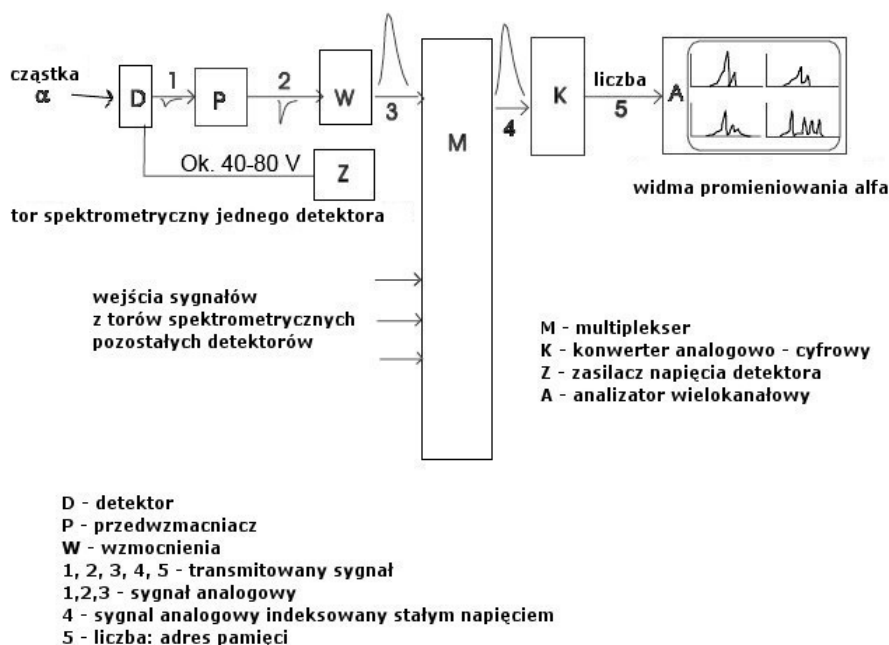
$$-\frac{dE}{dx} = \frac{e^4 z^2 n}{\epsilon_0 m_e v^2} Z \ln \frac{2m_e v^2}{I} \quad (1.11)$$

gdzie: v - szybkość cząstki alfa, n - liczba cząstek w jednostce objętości absorbenta z - liczba atomowa cząstki alfa, Z - liczba atomowa absorbenta, I - średni potencjał jonizacji absorbenta, ϵ_0 - stała dielektryczna ośrodka.

Relacja ta pokazuje, że straty energii na jednostkę drogi (jonizacja właściwa - LET) są odwrotnie proporcjonalne do kwadratu szybkości cząstki, czyli najwięcej energii cząstka traci przy końcu swojej toru ruchu i tam dochodzi do największej liczby aktów jonizacji. Znając jonizację właściwą cząstki, charakterystyczną dla danego absorbenta, można wyznaczyć zasięg cząstki w danym ośrodku:

$$R = \int_0^{E_\alpha} \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \quad (1.12)$$

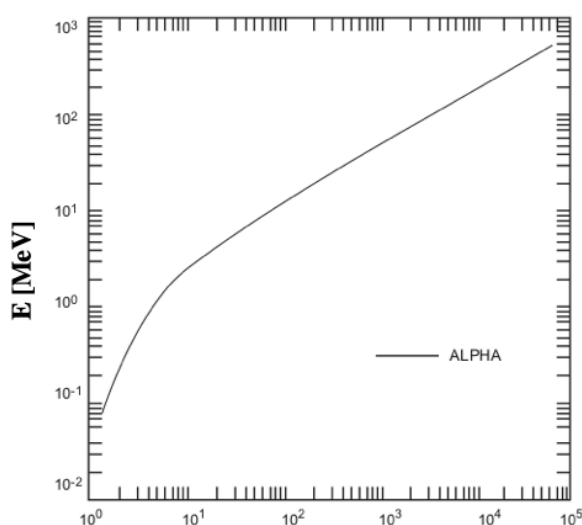
Zasięg cząstek alfa jest relatywnie niewielki i w powietrzu dla cząstek o energii 3 MeV - 8 MeV wynosi 1.5 cm - 7 cm. Ta własność sprawia, że pomiar alfa - spektrometryczny musi zostać poprzedzony separacją chemiczną pierwiastków, których izotopy mają podlegać pomiarom jakościowym i ilościowym. Schemat blokowy spektrometru promieniowania alfa został przedstawiony na rys. 1.22.



Rysunek 1.22: Schemat blokowy czterokomorowego spektrometru promieniowania alfa [44].

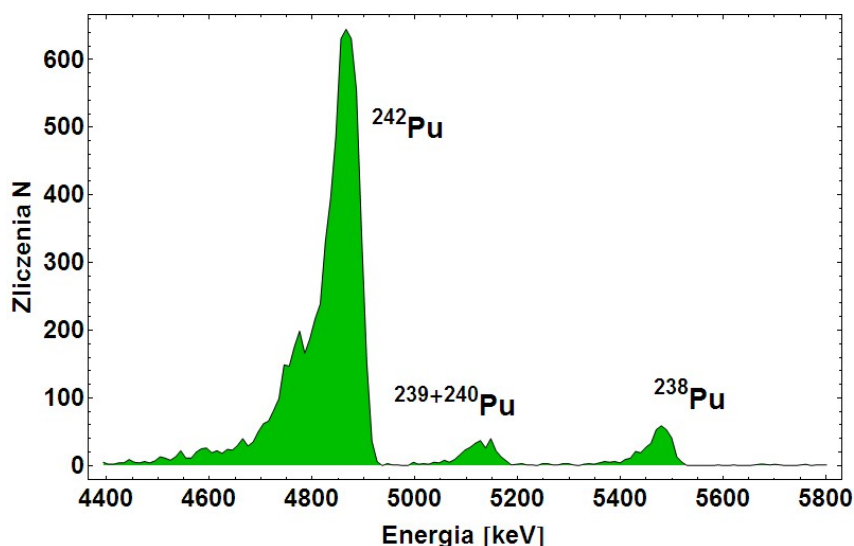
Najważniejszą częścią całego układu (poza elektroniką) jest detektor. Zasadniczym elementem takiego detektora jest złącze p-n silnie zubożone w domieszkowe nośniki ładunku,

którymi są elektrony i dziury. Ten charakterystyczny obszar (warstwa zaporowa) stanowi objętość czynną detektora. Najczęściej używanymi są detektory krzemowe typu PIPS (Pasivated Implanted Planar Silicon) o powierzchni czynnej $300 \text{ mm}^2 - 600 \text{ mm}^2$ oraz grubości tej powierzchni $100 \mu\text{m} - 300 \mu\text{m}$, zdolności rozdzielczej rzędu $17 \text{ keV} - 25 \text{ keV}$ (FWHM - Full Width at Half of Maximum), wydajności rejestracji $15 \% - 30 \%$ dla źródła w odległości $5 \text{ mm} - 10 \text{ mm}$ od detektora [84]. Grubość powierzchni czynnej detektora jest uwarunkowana zasięgiem cząstek alfa w krzemie. Ze względu na to, że cząstki alfa nie mają energii większej niż 10 MeV są całkowicie absorbowane w powierzchni krzemowej o grubości $100 \mu\text{m}$ (rys.1.23). Przykładowe widmo źródła promieniowania alfa otrzymane przy użyciu spektrometru Silena Alpha Quattro z detektorami PIPS o powierzchni czynnej 450 mm^2 i zdolności rozdzielczej 20 keV zostało przedstawione na rys.1.24.



R zasięg cząstek alfa w Si [μm]

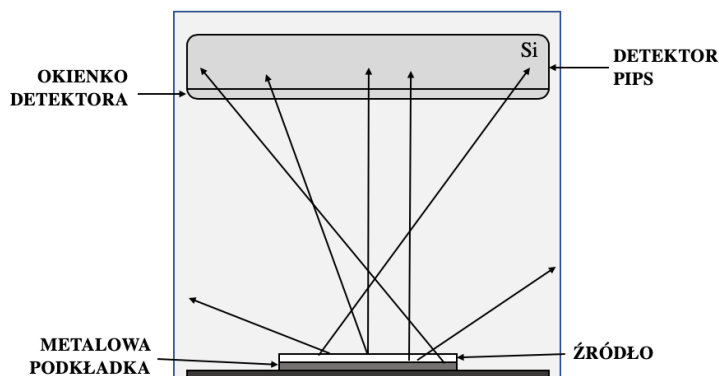
Rysunek 1.23: Zależność zasięgu cząstek alfa w krzemie od energii E tych cząstek [85].



Rysunek 1.24: Widmo Pu próbki całkowitego opadu atmosferycznego (maj 2007 r.) [43].

Kształt pików w widmie odbiega od klasycznego kształtu funkcji Gaussa gdyż charakteryzuje się lewostronną asymetrią. Jest to spowodowane kilkoma czynnikami. Po pierwsze,

jądra izotopów nie emitują mono - energetycznych cząstek alfa (tab. 1.10, 1.12). W wyniku rozpadu zostają wyemitowane cząstki o różnych energiach relatywnie bliskich sobie. Ze względu na zdolność rozdzielczą spektrometrii promieniowania alfa na widmie widoczny jest jeden pik. Cząstki alfa o większej energii, mają większe prawdopodobieństwo emisji (np. ^{239}Pu tab. 1.10) co sprawia, że uwidacznia się lewostronna asymetria pików. Po drugie, geometria pomiaru powoduje, że cząstki alfa docierają do detektora po różnych torach ruchu, co wiąże się ze zróżnicowaną stratą energii (rys.1.25, rów. 1.11). Po trzecie, cząstki alfa emitowane są z różnych głębokości źródła spektrometrycznego (rys.1.25). To zjawisko również związane jest z różną utratą energii, co pogłębia efekt asymetrii.



Rysunek 1.25: Trajektorie ruchu cząstek alfa w komorze spektrometru promieniowania alfa.

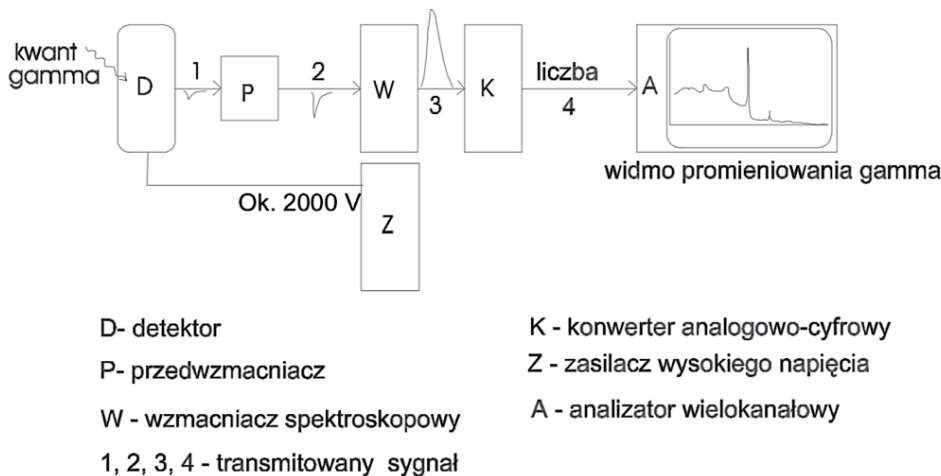
W ramach niniejszej pracy, spektrometria promieniowania alfa została wykorzystywana do oznaczeń ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm , ^{234}U , ^{235}U i ^{238}U w próbkach środowiskowych pobranych na terenie prefektury Fukushima. Z powodu podobnych zakresów energetycznych promieniowania alfa pochodzącego z rozpadu ^{239}Pu oraz ^{240}Pu (tab. 1.10) izotopy te będą identyfikowane jako suma tj. $^{239+240}\text{Pu}$.

1.4.2 Spektrometria promieniowania gamma

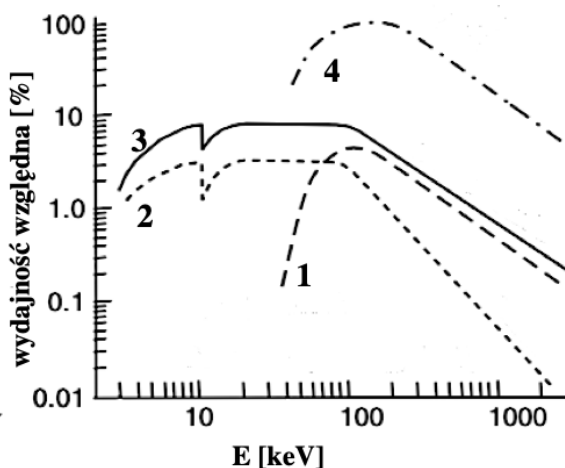
Spektrometria promieniowania gamma to jedna z najbardziej uniwersalnych spektrometrii jądrowych bazująca na promieniowaniu emitowanemu podczas deekscytacji jądra (bez zmiany kompozycji jądra). Jego energia mieści się w zakresie od kilkudziesięciu keV do ponad 0.1 PeV (promieniowanie kosmiczne) [89]. Dolny zakres energetyczny promieniowania gamma pokrywa się z górnym zakresem promieniowania X (od ok. 1 keV do ok. 100 keV) a ich rozróżnienie opiera się jedynie na procesach, w wyniku których powstają oba rodzaje promieniowania. Oddziaływanie promieniowania gamma z materią determinują przede wszystkim zjawiska takie jak: efekt fotoelektryczny, efekt Comptona (niekoherentne rozpraszanie fotonów na elektronach swobodnych i słabo związanych) i zjawisko tworzenia par (zachodzi dla energii kwantów gamma większej niż podwójna energia spoczynkowa elektronu tj. 1.022 MeV).

Spektrometria promieniowania gamma umożliwia identyfikację składu izotopowego i analizę ilościową izotopów promieniotwórczych w źródle, w oparciu o wyznaczone widmo promieniowania gamma. Jest to metoda pomiarowa zdecydowanie bardziej zróżnicowana niż spektrometria promieniowania alfa. Liczba kombinacji poszczególnych elementów toru spektrometrycznego i geometrii pomiarowych sprawia, że ma ona szerokie możliwości analityczne

i jednocześnie trudniej niż dla spektrometrii promieniowania alfa określić dla niej zakresy podstawowych wielkości charakteryzujących istniejące na świecie układy. Przykładowy schemat spektrometru promieniowania gamma został przedstawiony na rys.1.26.



Rysunek 1.26: Schemat ideowy spektrometru promieniowania gamma [44].



Rysunek 1.27: Zależność wydajności względnej detektorów germanowych od energii promieniowania gamma [89].

1. detektor typu p koaksjalny, 2. detektor planarny, 3. detektor typu n koaksjalny, 4. detektor well.

W spektrometrach promieniowania gamma detektorami najczęściej stosowanymi, z uwagi na dobrą zdolność rozdzielczą, są detektory półprzewodnikowe. Najbardziej popularnymi wśród nich są detektory germanowe HPGe (High Purity Germanium). Zakres energetyczny tych detektorów sięga od kilkudziesięciu eV do kilkunastu MeV (dolny zakres energetyczny - małe detektory typu Ultra LGe (Ultra Low Energy Germanium), górny zakres energetyczny - detektory duże typu cylindrycznego np.: REGe (Reverse Electrode Germanium)) [90]. Wybór typu detektora podyktowany jest celem eksperymentu. Przykładowe zakresy i jakość pracy detektorów germanowych, zostały przedstawione w postaci zależności wydajności względnej od energii promieniowania gamma na rys. 1.27. Zdolność rozdzielcza (FWHM) de-

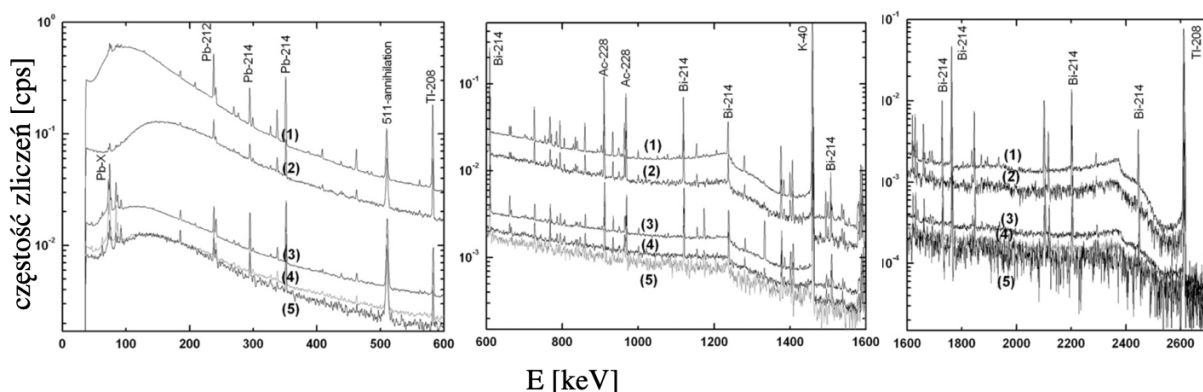
tektorów germanowych jest znacznie większa niż detektorów krzemowych używanych w spektrometrii promieniowania alfa (inny rodzaj promieniowania, inna charakterystyka oddziaływań promieniowania z materią). Przykładowy zakres FWHM dla linii 1332 keV (^{60}Co) dla detektorów (planarnych typu n i p - o wydajności względnej od 8 %, 19 % i 50 %, koaksjalnych typu p - o wydajności względnej 60 %, 80 %, 90 % i 106 %) z podziemnego laboratorium HADES (Belgia) wynosi 1.6 keV - 2.15 keV [91].

Czynnikiem mającym ogromny wpływ na czułość, jakość (limity detekcji pomiaru) i dokładność pomiarów ma poziom tła promieniowania, w skład którego wchodzi: 1. promieniowanie gamma naturalnych i sztucznych izotopów promieniotwórczych: ośrodka oraz materiałów konstrukcyjnych detektora, 2. promieniowanie gamma produktów rozpadu ^{222}Rn znajdującego się w powietrzu 3. wtórne promieniowanie kosmiczne. Jego redukcję zapewnia się poprzez zastosowanie czynnych i/lub biernych osłon detektora. Osłony czynne to przede wszystkim detektory Veto (scyntylatory plastikowe i komory wielodrutowe) oraz osłony antykomptonowskie (detektory NaI(Tl) lub BGO działające w antykoincydencji z detektorem). Jednak o wiele bardziej powszechne są osłony bierne. Konstruuje się je warstwowo ($\text{Pb} - \text{Cd} - \text{Cu}$). Pierwsza najbardziej zewnętrzna warstwa zbudowana jest z absorbenta o dużej liczbie atomowej (Z). Zwykle jest to stal lub ołów. Na podstawie równania 1.13 można z dużym przybliżeniem oszacować, że dla promieniowania gamma o energii 1 MeV 1 000-krotne osłabienie promieniowania tła nastąpi przy użyciu ok. 15 cm stali lub 9 cm ołowiu.

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x} \quad (1.13)$$

gdzie: I_0 - strumień kwantów gamma dla $x = 0$, μ - liniowy współczynnik osłabienia wiązki kwantów gamma, x - grubość absorbenta

Zastosowanie każdego z materiałów ma swoje wady. Współcześnie wytapiana stal zawiera żelazo zwykle z domieszką ^{60}Co (efekt stosowanej technologii produkcji), który jest źródłem promieniowania gamma o energii 1173 keV, 1332 keV; ($T_{1/2} = 5.27$ y) zaś ołów zawiera izotop ^{210}Pb emitujący promieniowanie gamma o energii 46.5 keV ($T_{1/2} = 22.2$ y). Dodatkowo sam ołów pod wpływem zewnętrznego promieniowania tła, emituje promieniowania charakterystyczne serii K o energii ok. 80 keV. W obu przypadkach rozwiązaniem byłoby zastosowanie materiałów wystarczająco „starych” (dla stali datą graniczną jest 1945 r. zaś w przypadku ołowiu dobrym rozwiązaniem jest zastosowanie materiału sprzed kilkuset lat). Ze względu na unikalność oraz cenę stosuje się zwykle materiały współczesne (ołów) jednocześnie dodając kolejne warstwy absorbentów o mniejszym Z . Zwykle jest to miedź, której 1 cm osłabia charakterystyczne promieniowanie Pb (ok. 80 keV) ok. 1 000-krotnie. Podobny efekt uzyskuje się przez zastosowanie 0.3 cm Cd lub Sn . Cd dodatkowo eliminuje neutrony termiczne tła i tym samym redukuje prawdopodobieństwo zajścia reakcji (n, γ) w detektorze. Stosując go, należy jednak wziąć pod uwagę charakterystyczne promieniowanie serii K (ok. 23 keV) wzbudzone promieniowaniem X Pb , które zostaje osłabione o ok. 1 000 razy przez 0.7 cm miedzi. Promieniowanie X serii K miedzi ma energię ok. 8 keV, która zostaje zaabsorbowana w obudowie detektora [92]. Przykład wyników zastosowania różnej kombinacji osłon biernych został przedstawiony na rys. 1.28. Dodatkowym zabiegiem determinującym jakość widma tła może być zastosowanie w postaci osłon, metali polerowanych (eliminacja zanieczyszczeń z powierzchni). Natomiast redukcję składowej tła związanej z ^{222}Rn uzyskuje się przez umieszczenie detektora w atmosferze par ciekłego azotu.



Rysunek 1.28: Widma promieniowania tła detektora HPGe typu p o wydajności 35% 1. bez osłony, 2. z osłoną 2 cm Cu, 3. z osłoną 10 cm Pb niepolerowanego, 4. z osłoną 10 cm Pb polerowanego, 5. z osłoną 10 cm Pb + 2 cm Cu [93].

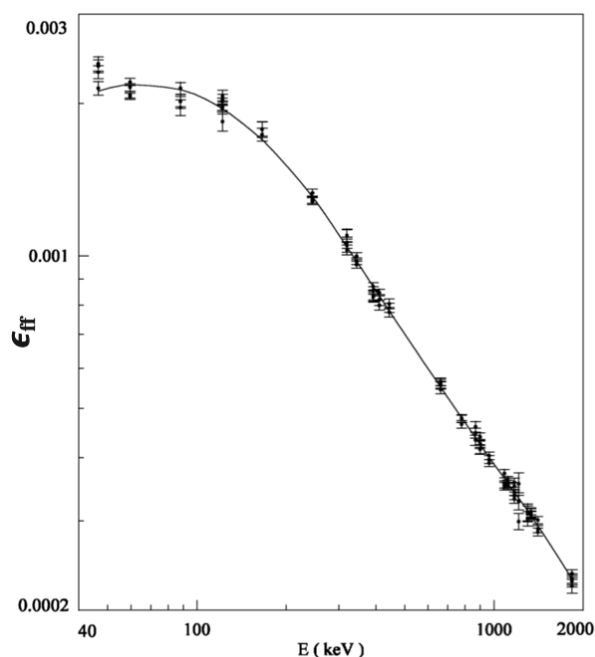
Podstawową wielkością charakteryzującą spektrometr promieniowania gamma dla pomiarów w danej geometrii jest wydajność spektrometru (wydajność spektrometru dla danej linii widmowej). Jej wartość określa się na podstawie zależności 1.14 bazując na danych z pomiaru źródła w danej geometrii zawierającego izotopy promieniotwórcze o znanych aktywnościach na dzień pomiaru (źródło kalibracyjne). Takie podejście do szacowania tej wielkości, zapewnia uwzględnienie wszystkich parametrów istotnych dla wydajności spektrometru tj.: wydajność wewnętrzną detektora, geometrie pomiaru, samoabsorpcję w próbce, etc. [92].

$$\epsilon_{ff}(E) = \frac{N(E)}{A(E)P(E)t} \quad (1.14)$$

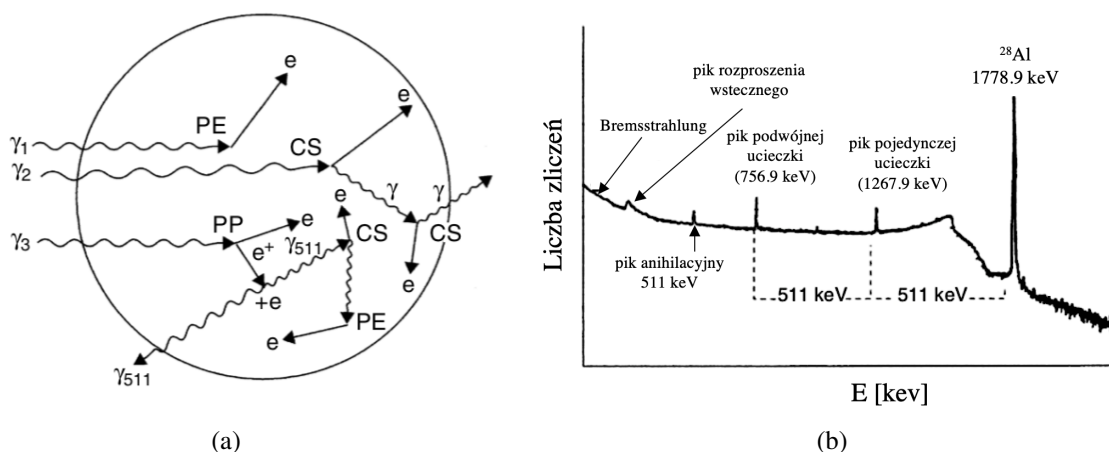
gdzie: $N(E)$ - liczba zliczeń linii widmowej promieniowania gamma, $A(E)$ - aktywność izotopu emitującego promieniowanie gamma o danej energii w czasie pomiaru, $P(E)$ - prawdopodobieństwo emisji promieniowania gamma o danej energii dla danego izotopu, t - czas pomiaru źródła zawierającego dany izotop.

Przykład krzywej wydajności dla detektora HPGe został przedstawiony na rys. 1.29. Jej kształt jest zdeterminowany mechanizmami i skutkami oddziaływania promieniowania gamma z kryształem rzeczywistego detektora. Efekty te są nieco bardziej skomplikowane niż to zostało zaznaczone na początku (zjawiska oddziaływania promieniowania gamma z materia). Pojawiają się dodatkowe efekty, które związane są z częściową absorpcją energii promieniowania gamma (pojedynczy lub podwójny pik ucieczki) rys. 1.30 a. Znajduje to swoje odbicie w strukturze widma (rys. 1.30 b). Intensywność pojawiających się efektów zależy m.in. od fizycznych wymiarów detektora oraz od energii oddziałującego promieniowania. Większe detektory zapewniają pełną absorpcję energii wielokrotnego rozproszenia kwantów gamma, mniejsza energia promieniowania gamma daje większe prawdopodobieństwo pełnej absorpcji w wyniku efektu Comptona. W zakresie niskich energii dominuje samoabsorpcja w źródle oraz absorpcja w materiałach detektora, a dla wysokich energii wydłużona droga swobodna kwantu gamma w detektorze. Krzywa wydajności ma charakterystyczne maksimum, którego położenie zależy od parametrów detektora oraz źródła promieniotwórczego i zwykle mieści się pomiędzy 90 keV - 130 keV [92].

Spektrometria promieniowania gamma została wykorzystana w pracy do oznaczeń izotopów gamma - promieniotwórczych w przygruntowej warstwie powietrza (aerozolowej i ga-



Rysunek 1.29: Krzywa efektywności detektora HPGe typu n o objętości czynnej 113 cm^3 [94].



Rysunek 1.30: Oddziaływanie promieniowania gamma z kryształem detektora a. schemat oddziaływań b. przykład struktury widma promieniowania gamma ^{28}Al [89].

PE - efekt fotoelektryczny, CS - efekt Comptona, PP - efekt tworzenia par, γ - kwant promieniowania gamma, e - elektron, e^+ - pozyton

zowej) w Krakowie oraz w próbkach środowiskowych z terenu prefektury Fukushima a także do identyfikacji skażeń wewnętrznych (rozd. 1.4.3).

1.4.3 Spektrometria całego ciała

Spektrometria całego ciała to spektrometria promieniowania gamma adaptowana do potrzeb podmiotu, który podlega pomiarowi. Podmiotem jest tu człowiek (określany w dalszej części pracy jako „pacjent”) natomiast przedmiotem badań izotopy gamma -promieniotwórcze (naturalne i sztuczne) obecne w ciele człowieka. Podstawową zaletą tej metody jest jej nie-

niszczący charakter i możliwość wykonywania pomiarów *in vivo* - „żywego” organizmu bez potrzeby pobierania próbek wydaliny lub wydzieliny. O unikalności tej metody pomiarowej świadczy fakt, że możliwe jest za jej pomocą, oznaczanie emiterów promieniowania gamma wchodzących w skład związków nierozpuszczalnych zdeponowanych w płucach.

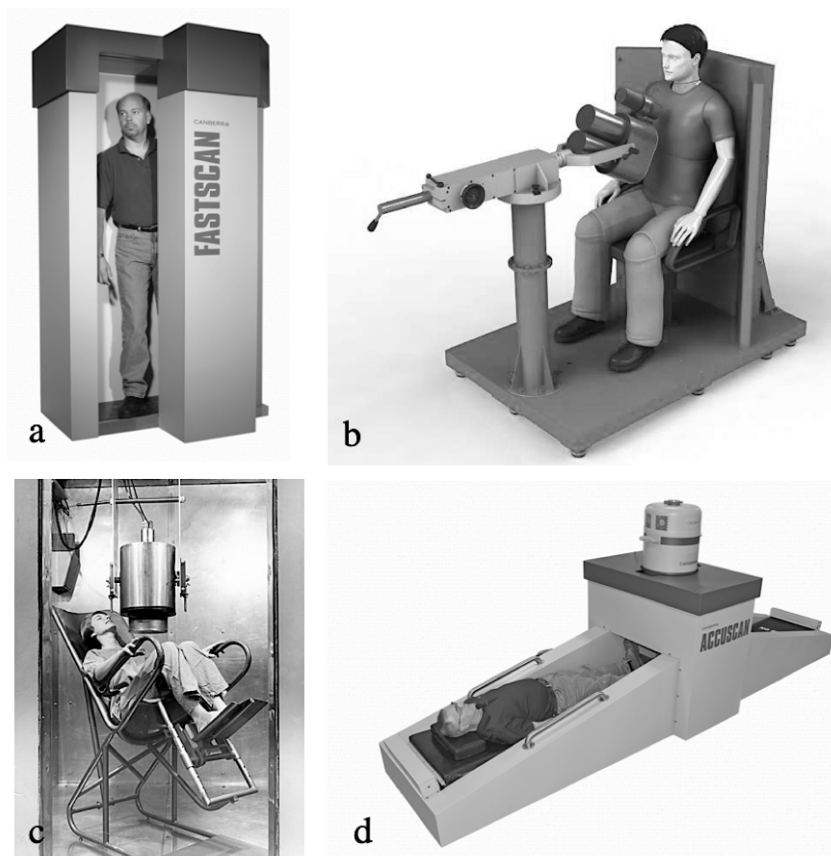
Technika ta narodziła się w czasach zimnej wojny czyli w okresie wielkiego rozwoju przemysłu jądrowego oraz wykorzystania izotopów promieniotwórczych nie tylko w wysoko wyspecjalizowanych działaniach cywilnych (medycznych) i militarnych ale także w życiu codziennym (np.: tarcze zegarków malowane farbą „radową”, czujki dymu ze źródłem ^{241}Am , etc.). Technika ta była też swego rodzaju odpowiedzią na zmianę postrzegania człowieka jako części środowiska a także wzrostu świadomości opinii publicznej dotyczącej powszechności skażeń promieniotwórczych. Spektrometria całego ciała zaspokajała i zaspokaja potrzebę zapewnienia kontroli skażeń wewnętrznych i zewnętrznych człowieka izotopami gamma - promieniotwórczymi, do których mogło dojść w trakcie wykonywanej pracy w przemyśle jądrowym (produkcji i przerobu materiałów jądrowych), zdarzeń jądrowych (awarie elektrowni jądrowych, awarie w zakładach przerobu paliwa) oraz testów broni jądrowej. Z czasem metoda ta znalazła również zastosowanie w pomiarach niskich aktywności, nie tylko sztucznych ale i naturalnych radionuklidów (jak np. ^{40}K), u ludzi nie tylko zawodowo narażonych na skażenia promieniotwórcze ale i ogółu społeczeństwa.

Spektrometria całego ciała „zadebiutowała” na międzynarodowej konferencji w Genewie (Szwajcaria) w 1955 r. [95]. Schemat układu pomiarowego stosowanego w tej technice nie różni się od schematu spektrometru promieniowania gamma (rys. 1.26). Początkowo w spektrometrii całego ciała stosowano głównie detektory scyntylicyjne (np.: NaI(Tl)) dlatego też angielska nazwa tej techniki to Whole Body Counting oraz aparatury Whole Body Counter (licznik całego ciała). Detektory te nie zapewniały zbyt dobrej zdolności rozdzielczej (ok. 8%, czyli ok. 50 keV szerokości połówkowej FWHM dla linii 662 keV ze źródła ^{137}Cs), a to z kolei było zdeterminowane stopniem rozwoju technologicznego detektorów promieniowania gamma jak i przeznaczenia samych spektrometrów. Zwykle spektrometry całego ciała miały za zadanie w ciągu krótkiego pomiaru (kilkuminutowego) dać jednoznaczną odpowiedź na temat istniejących lub nieistniejących skażeń pacjentów. Detektory scyntylicyjne jednak były i są niezastąpione w przypadku skażeń izotopami gamma - promieniotwórczymi o dużych aktywnościach. Obecnie spektrometry całego ciała coraz częściej konstruuje się w oparciu o detektory półprzewodnikowe, jak np. detektory germanowe HPGe o dużo lepszej zdolności rozdzielczej tj. sięgającej 0.15% (1 keV dla linii 662 keV ze źródła ^{137}Cs). Słowo „konstrukcja” jest tu jak najbardziej uzasadnione. Firmy specjalistyczne, komercyjne posiadają w swojej ofercie spektrometry całego ciała jednak oferta ta jest uboga w porównaniu ze standardowymi spektrometrami promieniowania gamma. Dlatego w wielu ośrodkach znajdują się spektrometry całego ciała własnej konstrukcji, która podyktowana jest przeznaczeniem spektrometru.

Pierwszą najważniejszą kwestią przy budowie spektrometru całego ciała jest zastosowanie osłony biernej lub jej brak. Jest to ważnym czynnikiem, który jak w przypadku spektrometrii promieniowania gamma, będzie wpływał na jakość pomiarów. Ze względu na podmiot badań, osłona musi mieć odpowiednie rozmiary (mogące pomieścić pacjenta). W laboratoriach na świecie stosuje się kilka rozwiązań: 1. wyłożenie ścian pokoju odpowiednimi materiałami osłonowymi (rozdział „Spektrometria promieniowania gamma”), 2. konstrukcja komory, której ściany zbudowane są z materiałów osłonowych, 3. zastosowanie częściowej osłony biernej (np.: osłaniająca detektor z jednej strony). Wybór rodzaju jak i kształtu osłony zależy od przeznaczenia układu spektrometrycznego (identyfikacja małych i/lub dużych skażeń sztucznymi i/lub

naturalnymi izotopami promieniotwórczymi) oraz od możliwości lokalowych i finansowych operatora.

Kolejnym ważnym elementem dla spektrometrii całego ciała jest geometria pomiaru czyli usytuowanie pacjenta względem detektora/detektorów. Stosowane pozycje pacjenta to: stojącą, siedzącą, półleżącą i leżącą (rys. 1.31).



Rysunek 1.31: Usytuowanie pacjenta względem detektorów w spektrometrach całego ciała a) pozycja stojąca [96], b) pozycja siedząca [97], c) pozycja półleżąca [98], d) leżąca [96] .

Detektory wchodzące w skład układu pomiarowego mogą być statyczne (zamontowane na stałe) lub mobilne: a) przesuwane w celu ułatwienia umiejscowienia pacjenta we właściwej pozycji względem detektorów, b) przesuwane względem pacjenta w trakcie pomiaru (skan całego ciała).

Technika spektrometrii całego ciała jest szeroko rozpowszechnioną zwłaszcza w krajach z rozwiniętą infrastrukturą jądrową. Liczniki i spektrometry całego ciała na całym świecie tworzą swego rodzaju sieci, w skład których wchodzi zarówno urządzenia mobilne, łatwe w eksploatacji (wyposażone w NaI) z prowizoryczną osłoną (wykorzystywane w przypadku niekontrolowanych zdarzeń jądrowych) jak i te o wyrafinowanej budowie, niezwykle precyzyjne, wyposażone w detektory półprzewodnikowe. Przykładem regionu posiadającego taką sieć mogą być kraje nordyckie, na terenie których zlokalizowanych jest 20 urządzeń tego typu (stan na rok 2011: Dania – 2, Finlandia – 2, Islandia – 1, Norwegia – 3, Szwecja – 12) [99]. W prefekturze Fukushima przed awarią w FDNPP działały 3 spektrometry całego ciała natomiast awaria wymusiła instalację kolejnych i w 2014 r. w sieci było zarejestrowanych powyżej 50 urządzeń [100].

W Polsce obecnie działają dwa spektrometry całego ciała. Pierwszy z nich znajduje się w Laboratorium Pomiarów Dozymetrycznych Narodowego Centrum Badań Jądrowych (NCBJ) w Świerku pod Warszawą. Został on uruchomiony pod koniec lat 60. XX w. i wykorzystywany jest do monitoringu skażeń wewnętrznych pracowników ośrodka jądrowego jak i instytucji zewnętrznych [101]. Dysponuje on spektrometrem HPGe umieszczonym nad pacjentem, w komorze osłoniętej 20 mm żelaza, 5 mm ołowiu, 1 mm kadmu i 0.5 mm miedzi. Wnętrze komory spektrometru zostało przedstawione na rys. 1.32 [102]. Drugi ze spektrometrów znajduje się Instytucie Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk (IFJ PAN) w Krakowie (omówienie w rozdziale „Badania własne”).



Rysunek 1.32: Wnętrze komory spektrometru całego ciała w Laboratorium Pomiarów Dozymetrycznych NCBJ w Świerku (autor zdjęcia: J. Ośko).

Spektrometria całego ciała została wykorzystana w badaniach do detekcji skażeń wewnętrznych sztucznymi izotopami promieniotwórczymi (^{131}I , izotopy Cs) pacjentów przebywających w Japonii w 2011 r.

1.5 Cel pracy

Awaria jądrowa w FDNPP (2011), określana jako druga największa po awarii w Czarnobylu (1986), była swego rodzaju zaburzeniem izotopowym w skali lokalnej, którego konsekwencje można było weryfikować w skali globalnej. Pomimo tego, że obecnie upływa 8 lat od tego zdarzenia to wciąż istnieją takie aspekty skutków uwolnień radionuklidów do środowiska, które wymagają głębszej analizy, usystematyzowania wiedzy, ponownego powrotu do danych zarchiwizowanych, użycia nowych narzędzi analitycznych, etc. Oprócz negatywnych konotacji izotopów promieniotwórczych, które w 2011 r. zostały wyemitowane z rdzeni reaktorów FDNPP, mogły one odegrać również pozytywną rolę, stając się doskonałym narzędziem, dzięki któremu moglibyśmy powiększyć swoją wiedzę na temat procesów zachodzących w środowisku. Uwolnione radionuklidy były i/lub są swego rodzaju markerem, którego wyjątkowość (niepowtarzalność) sprawia, że stanowią one klucz do źródła informacji na temat m.in. dalekozasięgowego transportu aerozoli, ewolucji stosunków izotopowych w środowisku, zasięgu izotopowych śladów awarii czy skażeń wewnętrznych i konsekwencji wywołanych tym zdarzeniem. I właśnie ta pozytywna strona „ambiwalentnej wartości” istnienia uwolnionych izotopów do środowiska, stała się inspiracją do powstania niniejszego opracowania. Celem przeprowadzonych badań i analiz były zatem:

- identyfikacja izotopowych śladów FDNPP w wybranych elementach środowiska lądowego prefektury Fukushima pomiędzy 2011 r. a 2015 r. oraz ich interpretacja w kontekście danych literaturowych,
- wyznaczenie trendów w ewolucji w czasie izotopowych sygnatur awarii FDNPP w środowisku lądowym, w tym tak rzadkich jak stosunek aktywności ^{244}Cm i izotopów Pu (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$),
- potwierdzenie heterogeniczności śladów pochodzących z FDNPP w środowisku lądowym prefektury Fukushima,
- określenie prawdopodobieństwa koegzystencji izotopów uwolnionych z różnych reaktorów FDNPP oraz oszacowanie frakcji związanych z blokiem nr. 1 i/lub blokiem nr. 2 i/lub blokiem nr. 3 FDNPP w rozważanym materiale badawczym,
- określenie poziomu skażeń wewnętrznych osób przebywających w Japonii w 2011 r. i poddanych pomiarom w IFJ PAN w kontekście wyników podobnych pomiarów wykonanych w Japonii i Europie (w tym przeprowadzenie kalibracji Spektrometru Całego Ciała w IFJ PAN w oparciu o modele budowane na danych uzyskanych poprzez zastosowanie fantomu POLA o zmiennej geometrii),
- identyfikacja izotopów promieniotwórczych pochodzących z FDNPP w przygruntowej warstwie atmosfery i całkowitym opadzie atmosferycznym w Krakowie oraz omówienie ich stężeń aktywności w kontekście wyników europejskich oraz północno - amerykańskich,
- powiązanie śladów izotopowych FDNPP w atmosferze z dalekozasięgowym transportem mas powietrza oraz towarzyszącą mu frakcjonacją pierwiastkową.

Należy dodać, że celem pracy było również stworzenie opracowania, które traktuje głównie i przede wszystkim o zdarzeniach z 2011 r. Odwołania do 1986 r. będą się pojawiały

tylko wtedy kiedy będą niezbędne do przeprowadzenia analiz przyczynowo - skutkowych lub konieczne w procesie szukania wyjaśnień poprzez stosowanie analogii. Niemniej jednak celem pracy nie był zabieg symetryzacji pomiędzy w/w awariami jądrowymi a więc porównywania ich w każdym z omawianych aspektów.

Rozdział 2

Badania własne

Badania własne, dotyczące izotopowych śladów awarii w FDNPP, rozpoczęły się dla autora w Polsce w 2011 r. i dotyczyły oznaczeń izotopów promieniotwórczych w przygrunтовой warstwie powietrza oraz weryfikacji skażeń wewnętrznych pacjentów przyjeżdżających z Japonii do Polski. Trzy lata później prowadzone były analizy sztucznych radionuklidów w wybranych elementach ekosystemu lądowego prefektury Fukushima. W celu zachowania chronologii zdarzeń, związanych z rozprzestrzenianiem się śladów FDNPP w środowisku, która wydaje się najbardziej racjonalna/intuicyjna z punktu widzenia czytelnika, intencyjnie została zaburzona prezentacja kolejności prowadzonych prac, która zaczynać się będzie od depozycji izotopów promieniotwórczych na terenie Japonii a kończyć na oznaczeniach śladów awarii w Polsce.

Badania, których wyniki zostały użyte w niniejszej pracy były prowadzone w Instytucie Fizyki Jądrowej PAN w Krakowie oraz w National Institutes for Quantum and Radiological Sciences and Technology (QST) w Chiba, Japonia. Niektóre działania wymagały współpracy, która jednoznacznie została zdefiniowana w każdym punkcie kiedy było to konieczne w poniższym rozdziale i opisana w Dodatku A. Dodatkowo, podano również projekty (granty, praca magisterska) w ramach których realizowane były badania (Dodatek A).

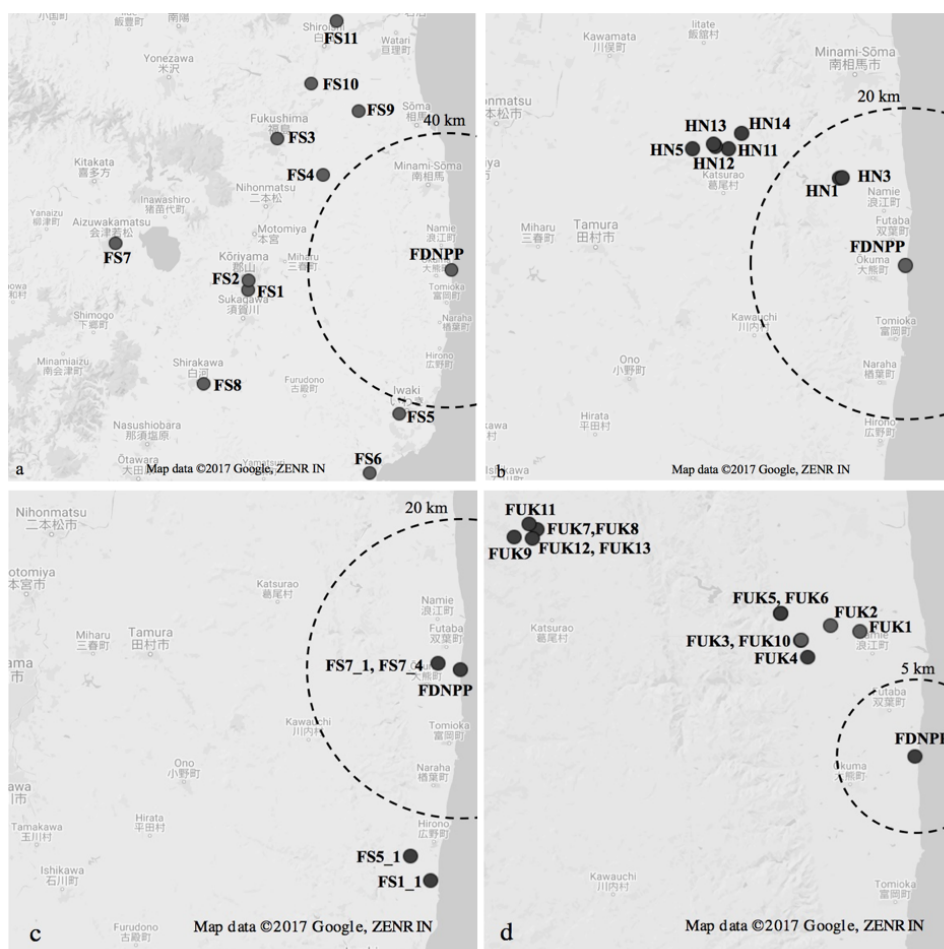
2.1 Oznaczenia antropogenicznych izotopów promieniotwórczych w próbkach środowiskowych, pobranych na terenie prefektury Fukushima

Identyfikacja izotopowych śladów awarii w FDNPP w ekosystemie lądowym prefektury Fukushima, oparta była o materiał badawczy pobrany w czasie czterech ekspedycji między 2011 r. a 2015 r. Zarówno miejsca pobrania próbek jak i ich liczba to wypadkowa kilku czynników tj.: wiedzy na temat aktualnego zasięgu skażenia izotopami promieniotwórczymi w prefekturze Fukushima, uzyskania pozwolenia na dostęp do terenów skażonych, uzyskania pozwolenia na pobranie określonych próbek z tych terenów. Ograniczenia w przyznawaniu w/w pozwoleń zaowocowały limitowaną serią próbek, które posłużyły jako materiał badawczy w niniejszym opracowaniu.

Dane dotyczące wykonawców i miejsc wykonania poszczególnych zadań wchodzących w zakres prezentowanych badań (rozdz. 2.1) zostały zebrane w Dodatku A część a).

Lokalizacja miejsc poboru próbek

W czasie przeprowadzonych ekspedycji do prefektury Fukushima wybrano 35 miejsc, w których zostały pobrane próbki środowiskowe. Pierwsza wyprawa miała miejsce w marcu 2011 r. ok. 6 - 8 dni po trzęsieniu ziemi, kiedy wiedza na temat obszaru skażenia wokół FDNPP była mocno ograniczona a jednocześnie wyznaczona była już strefa wyłączenia, do której dostęp był limitowany. Wówczas to, próbki zostały pobrane z terenu wokół FDNPP oddalonego od elektrowni o 40 km - 100 km, a obszar ten sięgał od Iwaki (FS5, FS6), Shirakawa (FS8) na południu przez Kōriyama (FS1, FS2), Aizuwakamatsu (FS7) na zachodzie, Fukushima (FS3) i Kawamata (FS4) na północnym zachodzie po Marumori (prefektura Miyagi, FS9), Kunimi (FS10), Zaō (prefektura Miyagi, FS11) na północy. Podczas drugiej i czwartej wyprawy, które odbyły się odpowiednio w kwietniu 2011 r. oraz czerwcu 2015 r. wybrano jedynie kierunek północno - zachodni od FDNPP i skupiono się na obszarze Namie. Taki wybór był podyktowany wiedzą na temat rozkładu skażeń w prefekturze Fukushima a obszar poboru próbek mieścił się odpowiednio pomiędzy 15 km a 35 km oraz 15 km a 30 km. W trakcie trzeciej ekspedycji, która miała miejsce w listopadzie 2011 r. pobrano próbki z obszaru pomiędzy 5 km a 25 km w kierunku północno - zachodnim oraz południowym od FDNPP (Hisanohama Shiodami: FS1_1, Hirono: FS5_1, Futaba Yamada: FS7_1, FS7_4). Lokalizacja miejsc poboru próbek została przedstawiona na rys.2.1 a szczegóły zebrane w tab. 2.1.



Rysunek 2.1: Lokalizacja miejsc poboru próbek podczas ekspedycji do prefektury Fukushima a) w marcu 2011 r., b) w kwietniu 2011 r., c) w listopadzie 2011 r. oraz d) w czerwcu 2015 r.

Tablica 2.1: Szczegóły dotyczące miejsc poboru oraz rodzaju próbek pobranych w czasie czterech ekspedycji na teren prefektury Fukushima w latach 2011 - 2015

Lp.	Kod próbki	Szerokość geogr.	Długość geogr.	Odległość od FDNPP ¹ [km]	Kierunek od FDNPP ²	Moc dawki [$\mu\text{Sv/h}$] ³	Rodzaj próbki	Okres poboru próbek
1	FS1	37.3694	140.3739	60	W	5.1	gleba	Marzec 2011 r.
2	FS2	37.3944	140.3754	60	W	9.7		
3	FS3	37.7643	140.4680	65	NW	7.4		
4	FS4	37.6695	140.6168	45	NW	4.5		
5	FS5	37.0439	140.8638	45	S	1.1		
6	FS6	36.8887	140.7678	65	S	0.41		
7	FS7	37.4914	139.9434	100	W	0.49		
8	FS8	37.1235	140.2293	80	SW	2.1		
9	FS9	37.8360	140.7321	55	NW	2.4		
10	FS10	37.9069	140.5787	65	NW	2.9		
11	FS11	38.0693	140.6608	80	NW	0.45	Kwiecień 2011 r.	
12	HN1	37.5220	140.9348	15	NW	0.051		
13	HN3	37.5227	140.9388	15	NW	0.042		
14	HN5	37.5568	140.7190	30	NW	0.069		
15	HN11	37.5568	140.7718	30	NW	0.041		
16	HN12	37.5592	140.7524	30	NW	0.065		
17	HN13	37.5618	140.7496	30	NW	0.081		
18	HN14	37.5743	140.7912	30	NW	0.21		
19	FS1_1	37.1684	140.9899	30	S	0.50	Listopad 2011 r.	
20	FS5_1	37.1983	140.9599	30	S	0.44		
21	FS7_1	37.4307	141.0007	5	NW	85		
22	FS7_4	37.4307	141.0008	5	NW	85		
23	FUK1	37.4946	140.9911	10	NW	0.48	Czerwiec 2015 r.	
24	FUK2	37.4984	140.9695	10	NW	4.1		
25	FUK3	37.4918	140.9475	10	NW	2.1		
26	FUK4	37.4817	140.9524	10	NW	2.6		
27	FUK5	37.5082	140.9327	15	NW	6.5		
28	FUK6	37.5082	140.9327	15	NW	6.5		
29	FUK7	37.5587	140.7532	30	NW	7.2		
30	FUK8	37.5588	140.7533	30	NW	4.8		
31	FUK9	37.5542	140.7367	30	NW	2.1		
32	FUK10	37.4919	140.9476	10	NW	2.6		
33	FUK11	37.5620	140.7476	30	NW	3.5	ściółka	
34	FUK12	37.5534	140.7501	30	NW	2.6		
35	FUK13	37.5534	140.7501	30	NW	3.0		

¹ odległość podana z dokładnością do 5 km; ² N - północ, S - południe, W - zachód, NW - północny zachód, SW - południowy zachód; ³ - pomiar wykonany 1m nad poziomem ziemi

Po wybraniu miejsca poboru próbki dokonywano pomiaru mocy dawki na wysokości 1m nad poziomem ziemi. Wyniki powyższych pomiarów zostały zaprezentowane w tab. 2.1.

Rodzaje pobranego materiału badawczego

W ramach niniejszego opracowania, do badań użyto łącznie 35 próbek środowiskowych z czego 26 to próbki gleby, 4 to próbki ściółki leśnej i 5 to próbki materiału naniesionego (tab. 2.1). Poniżej zostanie zwięźle opisany materiał badawczy:

- próbki gleby to w niniejszym opracowaniu powierzchniowa warstwa gleby pobrana do głębokości 5 cm bez wyznaczenia wielkości powierzchni, z której nastąpiło pobranie. Głębokość ta została ustalona w trakcie pierwszej wyprawy a później była konsekwentnie stosowana. Została ona zdefiniowana tak by zapewnić pobranie wszystkich izotopowych śladów awarii w FDNPP a jednocześnie dać możliwość porównywania wyników własnych z wynikami innych prac. Próbki gleby były pobrane podczas wszystkich czterech

wypraw.

- próbki ściółki leśnej to obumarła materia organiczna (gałązki, liście, igliwie, kora, etc.) pochodzenia roślinnego i zwierzęcego. Próbki te były pobierane bez zachowania stratyfikacji warstw (mieszanka warstw) wyłącznie podczas ostatniej czwartej wyprawy w czerwcu 2015 r.
- próbki materiału naniesionego (alluvial dust [103]), tak określone zostały w niniejszym opracowaniu próbki materiału pobranego spod rynien budynków, z rowów systemów odwadniających drogi lokalne, z miejsc ubytków w nawierzchni dróg (rys. 2.2). Wszystkie te miejsca można traktować jak „pułapki” dla materiałów wymywanych i przenoszonych wraz z wodą opadów atmosferycznych lub przez wiatr. Tę kategorię próbek można utożsamiać z próbkami określanymi w literaturze jako „black substances” (z uwagi na kolor materiału, który w rzeczywistości jest ciemno brązowy/szary)[104]–[106] aczkolwiek były to próbki pobierane tylko z powierzchni dróg. Próbki materiału naniesionego zostały pobrane podobnie jak próbki ściółki leśnej podczas wyprawy w czerwcu 2015 r.



Rysunek 2.2: Wybrane miejsca poboru próbek materiału naniesionego w czerwcu 2015 r. a) Murohabashi - próbka FUK5 b) Tsushima Bridge - próbka FUK9.

2.1.1 Oznaczanie izotopów gamma - promieniotwórczych (^{134}Cs , ^{137}Cs)

Metodyka przygotowanie próbek do pomiarów gamma - spektrometrycznych

Wszystkie próbki po przewiezieniu do laboratorium były suszone najpierw w temperaturze pokojowej przez okres ok. 4 tygodni a następnie w suszarce laboratoryjnej w temperaturze 105 °C. Próbki gleby i materiału naniesionego przesiewano przez sito o średnicy oczek 2 mm i tylko tą frakcją (tj. frakcją o ziarnach ≤ 2 mm) kierowano do pomiarów przy użyciu spektrometrii promieniowania gamma. Próbki ściółki leśnej rozdrabniano przy użyciu blendera ręcznego (czas pracy 10 s). Wszystkie próbki ponownie suszono w suszarce laboratoryjnej w temperaturze 105 °C przez ok. 24 h w celu wyznaczenia masy suchej i pakowano do polipropylenowych pojemników (japoński standard U8 - średnica 49 mm, wysokość zależna od stosowanej geometrii pomiaru).

Metodyka pomiarów gamma - spektrometrycznych

Do oznaczania izotopów gamma - promieniotwórczych używano spektrometru z koksjalnym detektorem HPGe typu p (ORTEC, GEM 100210) o względnej wydajności 100 % i zdolności rozdzielczej 2.1 keV (FWHM) dla linii 1332 keV (^{60}Co). Energetyczną i wydajnościową kalibrację spektrometru wykonano w oparciu o certyfikowane przez National Calibration Institute of Japan (NMIJ, JCSS 0061) źródła zawierające mieszaninę izotopów gamma - promieniotwórczych o składzie przedstawionym w tab. 2.2.

Tablica 2.2: Skład izotopowy źródeł gamma - promieniotwórczych (kalibracyjnych) certyfikowanych przez National Calibration Institute of Japan (NMIJ, JCSS 0061).

Izotop	$T_{1/2}$	E [keV]	I [%]
^{109}Cd	461.9 (4) d	88.0336 (10)	3.664 (16)
^{57}Co	271.74 (6) d	122.06065 (12), 136.47356 (29)	85.60 (17), 10.68 (8)
^{139}Ce	137.63 (3) d	165.8575 (11)	79.9
^{51}Cr	27.704 (4) d	320.0824 (4)	9.91 (1)
^{85}Sr	64.849 (7) d	514.0048 (22)	96 (4)
^{137}Cs	30.08 (9) y	661.657 (3)	85.1 (2)
^{54}Mn	312.20 (20) d	834.848 (3)	99.976 (1)
^{88}Y	106.626 (21) d	898.042 (3), 1836.063 (12)	93.7 (3), 99.2 (3)
^{60}Co	1925.28 (14) d	1173.228 (3), 1332.492 (4)	99.85 (3), 99.9826 (6)

$T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania, I-prawdopodobieństwo emisji

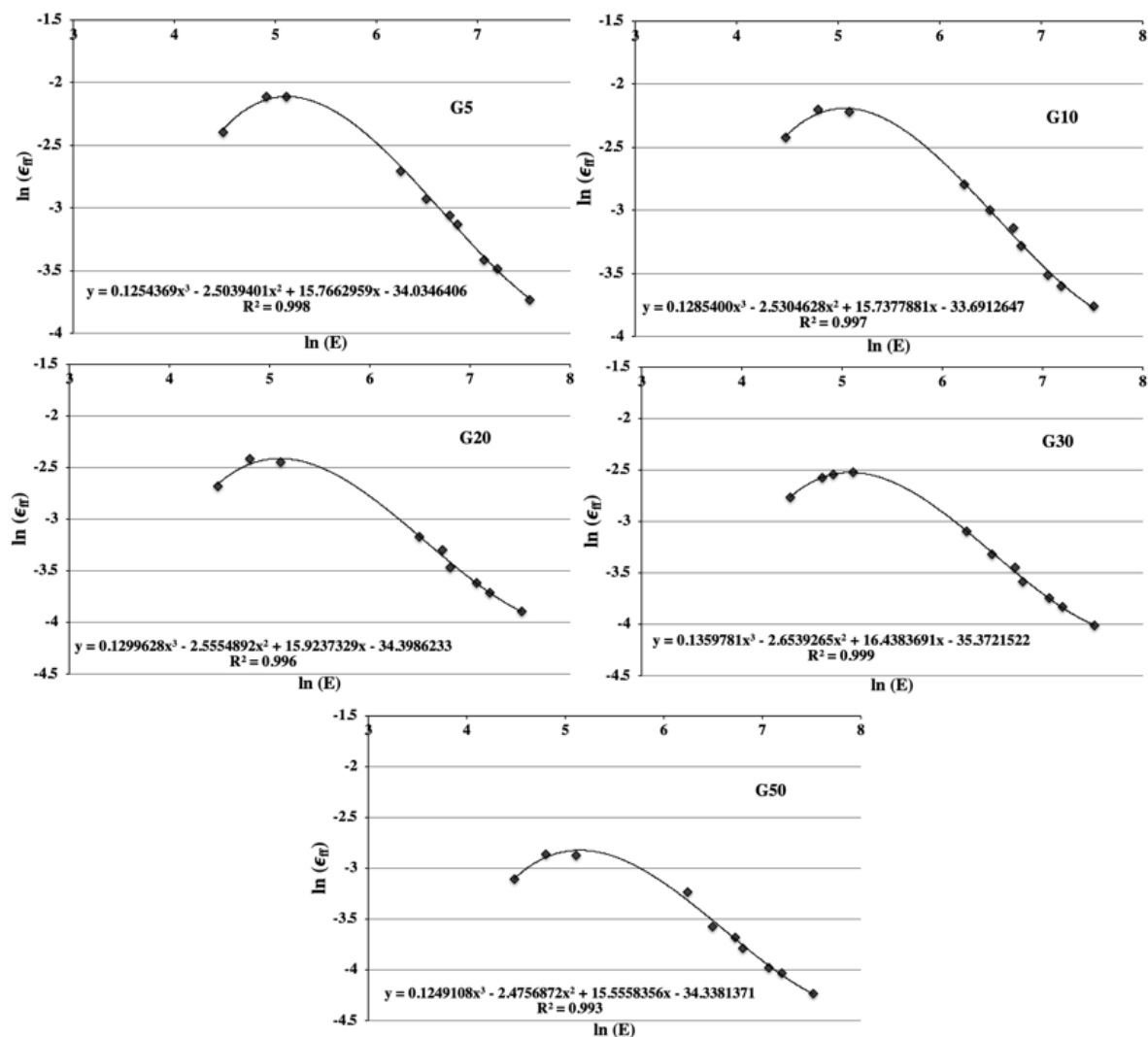
W czasie pomiarów stosowano pięć różnych geometrii pomiarowych odpowiadających geometriom posiadanych certyfikowanych źródeł promieniotwórczych. Geometrie te były definiowane przez wymiary walcowego polipropylenowego pojemnika U8 (średnica 49 mm) wypełnionego do wysokości 5.25 mm, 10.3 mm, 21.0 mm, 30.85 mm oraz 48.2 mm (oznaczane odpowiednio jako G5, G10, G20, G30, G50). Korzystając z równania 1.14 przygotowano kalibrację wydajnościową dla każdej geometrii pomiaru (rys. 2.3).

Pomiary gamma - spektrometryczne pozwoliły zidentyfikować w próbkach 2 sztuczne izotopy tj. ^{134}Cs , ^{137}Cs (rys. 2.4).

Stężenia aktywności dla tych izotopów w badanych próbkach zostały oszacowane na podstawie równania:

$$C(E) = \frac{N(E)_s}{t_s} \frac{t_t}{I(E)\epsilon_{ff}(E)m} \quad (2.1)$$

gdzie: $C(E)$ - stężenie aktywności danego izotopu emitującego kwanty gamma o energii E; $N(E)_s$, t_s - liczba zliczeń w pikie odpowiadającym energii E w widmie próbki oraz czas pomiaru próbki; $N(E)_t$, t_t liczba zliczeń w pikie odpowiadającym energii E w widmie tła oraz czas pomiaru tła; $I(E)$ - prawdopodobieństwo emisji kwantów gamma o energii E, $\epsilon_{ff}(E)$ - wydajność spektrometru dla energii E i danej geometrii pomiarowej, m - masa próbki.

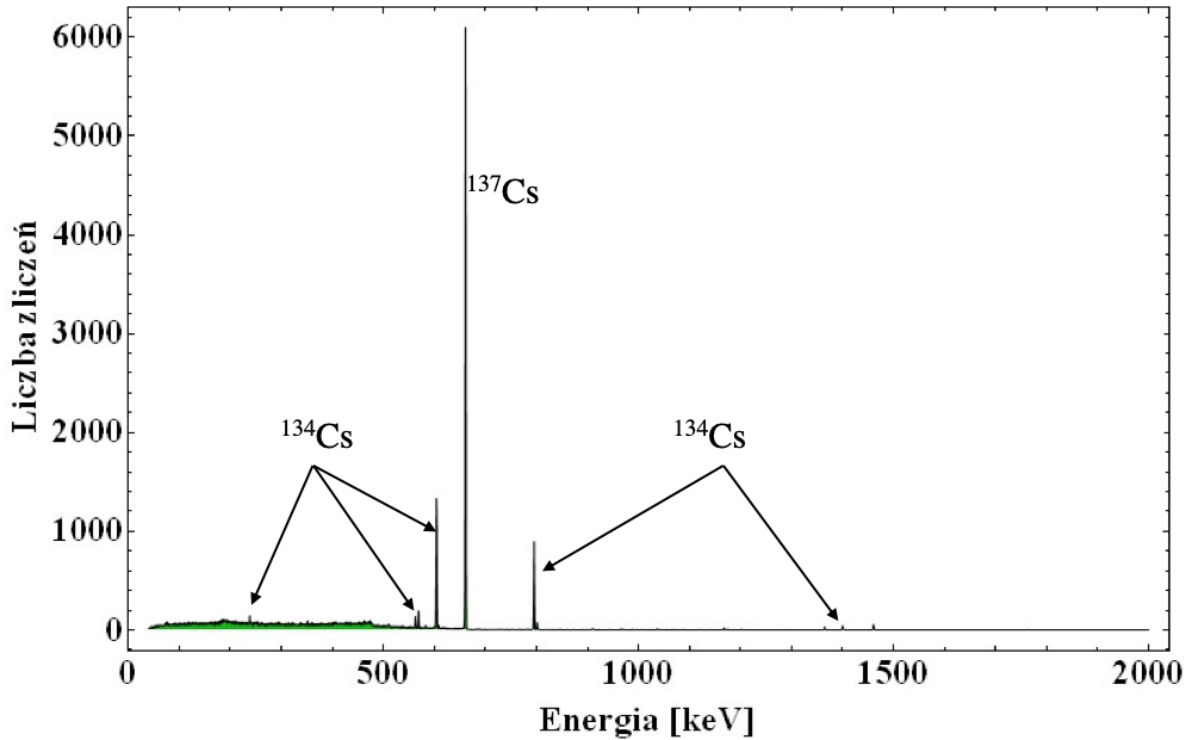


Rysunek 2.3: Krzywe wydajności dla koaksjalnego detektora HPGe typu p o wydajności względnej 100% dla geometrii G5, G10, G20, G30 i G50

Otrzymane wyniki skorygowano na dzień awarii w FDNPP (2011.03.11, w tym przypadku data referencyjna) wprowadzając poprawkę na rozpad:

$$C(E)_{corr} = C(E)e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}}\Delta t} \quad (2.2)$$

gdzie: $C(E)_{corr}$ - stężenie aktywności danego izotopu emitującego kwanty gamma o energii E po korekcie; $T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, Δt - czas pomiędzy dniem referencyjnym a dniem pomiaru.



Rysunek 2.4: Widmo próbki FUK9, czas pomiaru 3 596 s, spektrometr promieniowania gamma z koaksjalnym detektorem HPGe typu p (ORTEC, GEM 100210) o względnej wydajności 100 % i FWHM 2.1 keV dla linii 1332 keV .

Minimalne mierzalne stężenie aktywności oszacowano na podstawie wzoru Currie [107]:

$$MDC(E) = \frac{2.706 + 4.653 \sqrt{B(E) + \frac{N(E)_t}{t_t} t_s}}{I(E) \epsilon_{ff}(E) t_s m} \quad (2.3)$$

gdzie: $MDC(E)$ - minimalne mierzalne stężenie aktywności dla określonej energii kwantów gamma E dla określonej geometrii pomiarowej; $B(E)$ - liczba zliczeń w kontinuum komptonowskim pod pikiem dla danej energii E w widmie próbki obliczana przy zastosowaniu oprogramowania P.I.M.P. autorstwa J.W. Mietelskiego [108] do analizy widm według zależności:

$$B(E) = \frac{dN^2(E)_s - N(E)_s}{2} \quad (2.4)$$

gdzie: $dN(E)_s$ - niepewność liczby zliczeń w pikie dla określonej energii E w widmie próbki.

Wyniki analiz zostały zebrane w tab. 2.8. Przy szacowaniu stężenia aktywności dla ^{134}Cs z powodów technicznych nie uwzględniono efektu sumacyjnego a za wynik przyjęto (zgodnie ze stosowaną praktyką w literaturze) średnią stężenia aktywności obliczoną dla dwóch energii o największym prawdopodobieństwie emisji tj. 604.7 keV oraz 795.9 keV (tab. 1.8). Wiąże się to oczywiście z niedoszacowaniem stężenia aktywności ^{134}Cs w próbce, dlatego jako niepewności do wyników dla tego izotopu użyto niepewności rozszerzonych ($k=2$).

2.1.2 Oznaczanie izotopów alfa - promieniotwórczych (Pu, U, ^{241}Am i ^{244}Cm)

Oznaczenia wybranych izotopów alfa - promieniotwórczych odbywało się w oparciu o procedury radiochemiczne częściowo bazujące na zmodyfikowanych opracowaniach metodyk stosowanych w Pracowni Badań Skażeń Radioaktywnych IFJ PAN [109] a także własnych opracowaniach autora. Stosowana procedura była procedurą sekwencyjną o ustalonym porządku separacji pierwiastków tj.: Pu, U, Am wraz z Cm. Szczegółowy opis kolejnych etapów procedury został zamieszczony w Dodatku B.

Metodyka przygotowania próbek do pomiarów alfa - spektrometrycznych

Po pomiarach przy użyciu spektrometrii promieniowania gamma próbki były przygotowywane do oznaczeń izotopów alfa - spektrometrycznych. W tym celu materiał, który wcześniej był przygotowany i wykorzystany do pomiarów gamma - spektrometrycznych (gleba i materiał naniesiony - frakcja o wielkości ziaren ≤ 2 mm, ściółka leśna - materiał zblendowany) podlegał mieleniu i homogenizacji przy użyciu młyna planetarno - kulowego wyposażonego w agatowe elementy rozdrabniające (naczynia i kule). Proces mielenia odbywał się przy zadanych parametrach: szybkość kątowna - 250 obrotów/min i czas - 20 min. Następnie ok. 10 g naważki materiału próbek były umieszczane w porcelanowych parownicach i suszone w $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ przez ok. 24 h w celu wyznaczenia masy suchej. W kolejnym kroku materiał podlegał spopieleniu w piecu muflowym w temperaturze $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ przez 18 h (rys. 2.5).



Rysunek 2.5: Badany materiał środowiskowy po spopieleniu w piecu muflowym w temperaturze $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ przez 18 h.

Zmierzony deficyt masy (różnica mas przed i po spopieleniu) związany był z ubytkiem materii organicznej (tab. 2.8) z materiału próbki.

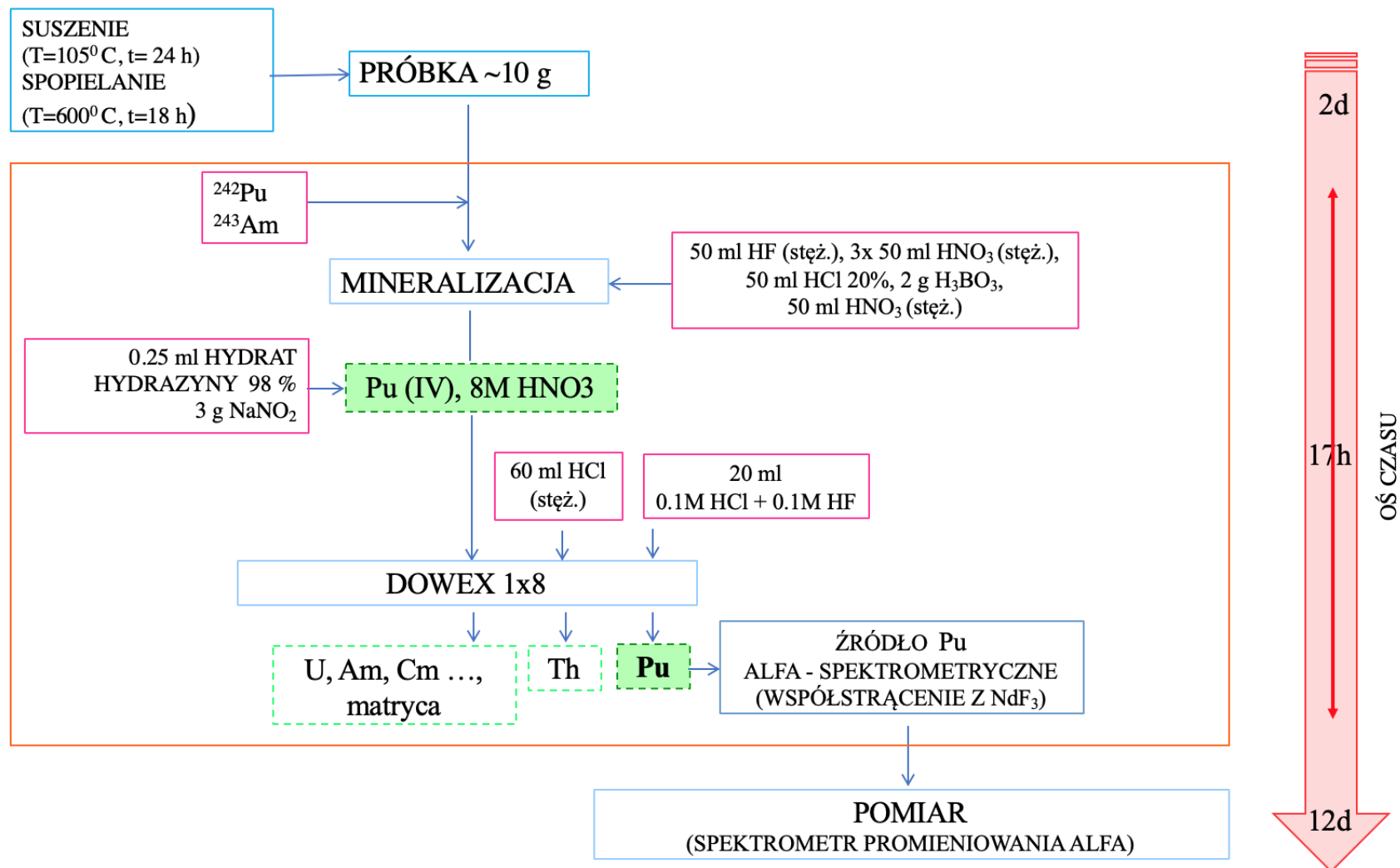
Metodyka wydzielania Pu z materiału próbek środowiskowych - 1 etap metody sekwencyjnej

Przed rozpoczęciem procedur radiochemicznych, do spopielenych próbek przeniesionych do naczyń teflonowych dodawano znaczniki: ^{242}Pu oraz ^{243}Am (nie dodawano znacznika U). Kolejne etapy stosowanej procedury (rys. 2.6) uzależnione były od kompozycji materiału

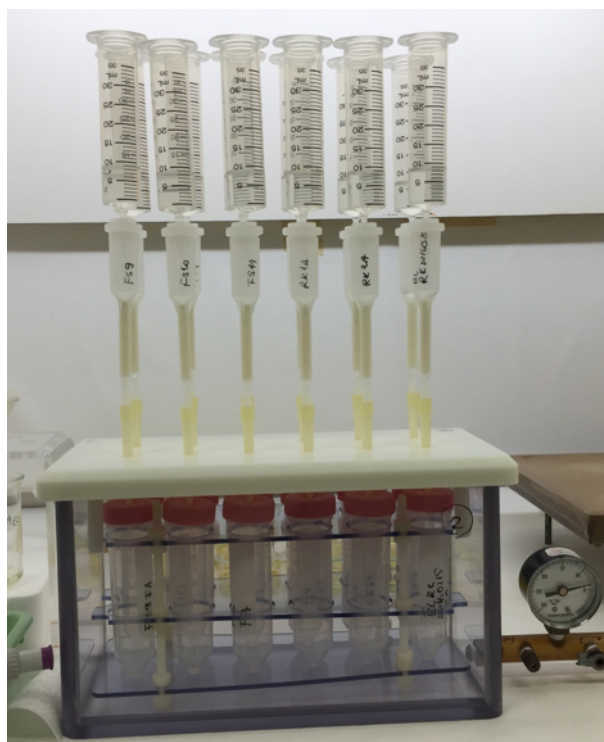
próbki oraz od celu badań. Z uwagi na obecność krzemionki jak i możliwość istnienia w badanym materiale gorących cząstek z FDNPP, zdecydowano się na pełną mineralizację (rozpuszczenie) próbek i użycie stężonego HF (Dodatek B, rys. 2.6).

Separację Pu wykonano przy zastosowaniu chromatografii jonowymiennej używając w tym celu anionitu - żywicy DOWEX 1x8 200 mesh - 400 mesh (WAKO). Zależność objętościowego współczynnika podziału pierwiastków od molarności roztworu deponowanego na anionicie [110] wymusiła ustawienia Pu na odpowiednim stopniu utlenienia (IV). Pu tworząc związki w środowisku może występować na III, IV, V, rzadziej VI stopniu utlenienia. Pierwszym więc etapem tego kroku procedury było zredukowanie jonów Pu na III stopień utlenienia (hydrat hydrazyny) a następnie przeprowadzenie Pu na stopień IV (azotyn sodu) w obecności jonów Fe (Dodatek B, rys. 2.6). Roztworem deponowanym na kolumnie z żywicą jonowymienną był 8M HNO₃. Separację pierwiastków wykonano przy użyciu systemu próżniowego (rys. 2.7).

Z wydzielonych frakcji z Pu wykonano źródła alfa - spektrometryczne metodą współstrącania z NdF₃ (Dodatek B) [111]. Tworzące się kryształy NdF₃, które pułapkowały w swojej sieci Pu znajdujący się w roztworze zostały przefiltrowane przez cienkie filtry membranowe o średnicy porów 0.1 μm.



Rysunek 2.6: Schemat etapu procedury sekwencyjnej z wydzieleniem Pu z materiału próbek środowiskowych wykorzystanej w badaniach w QST.



Rysunek 2.7: System próżniowy używany do separacji pierwiastkowej w trakcie badań w QST.

Metodyka pomiarów alfa - spektrometrycznych

Przygotowane źródła Pu były kierowane do pomiarów przy użyciu spektrometru promieniowania alfa (rys. 2.8). Podczas badań używano spektrometru Alpha Ensemble firmy ORTEC z detektorami typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm². Przykładowe widmo Pu zostało przedstawione na rys. 2.9.

Aktywności ²³⁸Pu i ²³⁹⁺²⁴⁰Pu zostały obliczone korzystając z zależności 2.5:

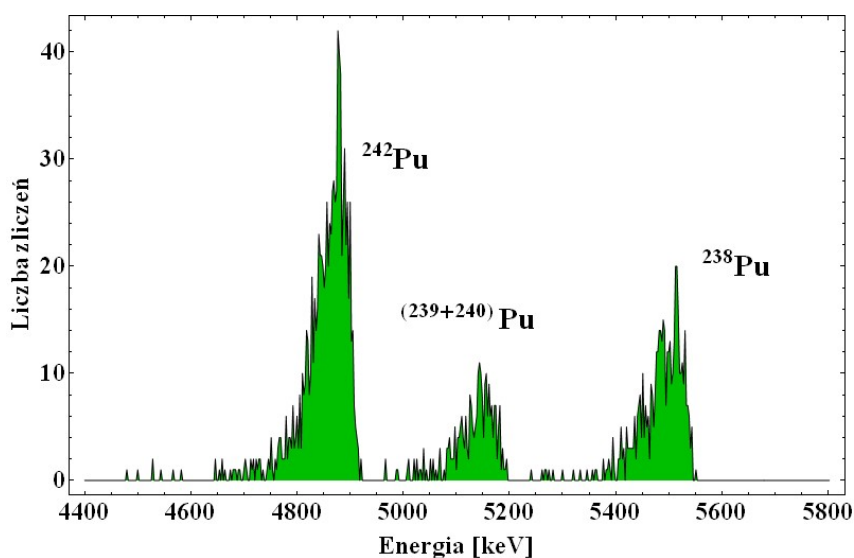
$$A_{is} = A_{tr} \frac{\frac{N_{is}}{t_s} - \frac{N_{it}}{t_t}}{\frac{N_{tr}}{t_s}} \quad (2.5)$$

gdzie: A_{is} - aktywność danego izotopu w próbce; A_{tr} - aktywność znacznika dodanego do próbki; N_{is}, t_s - liczba zliczeń w pikie danego izotopu w widmie próbki oraz czas pomiaru widma próbki; N_{it}, t_t - liczba zliczeń w obszarze energetycznym oznaczanego izotopu w widmie tła oraz czas pomiaru tła; N_{tr} - liczba zliczeń w pikie znacznika w widmie próbki; i - wybrany izotop w tym przypadku izotop Pu (²³⁸Pu lub ²³⁹⁺²⁴⁰Pu).

Powyższa formuła jest prawdziwa jedynie przy założeniu braku frakcjonacji izotopowej w trakcie separacji. Czas pomiaru źródeł Pu mieścił się w zakresie od 3 do 17 dni (średnia 12 dni) zaś aktywność dodawanego znacznika ²⁴²Pu od 0.00468 Bq do 0.00949 Bq (średnia 0.00599 Bq).



Rysunek 2.8: Komora spektrometru promieniowania alfa (Alpha Ensemble, ORTEC) z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm² oraz z widocznym źródłem alfa - spektrometrycznym (QST).



Rysunek 2.9: Widmo frakcji Pu próbki FUK9, czas pomiaru 872942 s, spektrometr promieniowania alfa Alpha Ensemble, ORTEC z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm².

Stężenie aktywności obliczono na podstawie równania:

$$C_{is} = \frac{A_{is}}{m} \quad (2.6)$$

gdzie: C_{is} - stężenie aktywności danego izotopu w próbce; m - masa sucha próbki.

MDC dla danego izotopu Pu w danej geometrii szacowano korzystając z zależności Currie w postaci:

$$MDC_i = \frac{2.706 + 4.653 \sqrt{\frac{N_{it}}{t_t} t_s}}{Y \epsilon_{ff} t_s m} \quad (2.7)$$

gdzie: MDC_{is} - minimalne mierzalne stężenie aktywności danego izotopu w próbce; Y - wydajność chemiczna procedury; ϵ_{ff} - wydajność rejestracji cząstek alfa dla danej geometrii dla danego detektora.

Wydajność rejestracji cząstek alfa została wyznaczona na podstawie pomiarów źródła o znanej aktywności w geometrii, w której były mierzone źródła Pu próbek. Średnia wydajność wynosiła 0.242 z odchyleniem standardowym (SD) 0.005. Wydajność chemiczna procedury szacowana była na podstawie wydajności znacznika:

$$Y = \frac{\frac{N_{tr}}{t_s}}{A_{tr} \epsilon_{ff}} \quad (2.8)$$

Wszystkie wyniki analiz próbek zostały zebrane w tab. 2.8 wraz z wartościami MDC kiedy oszacowana wartość była mniejsza od tego MDC. Poprawność zastosowanej metody radiochemicznej została sprawdzona i potwierdzona przy użyciu materiałów referencyjnych o znanych stężeniach aktywności rozważanych izotopów. Komplet wyników wraz z danymi referencyjnymi został przedstawiony w tab. 2.3.

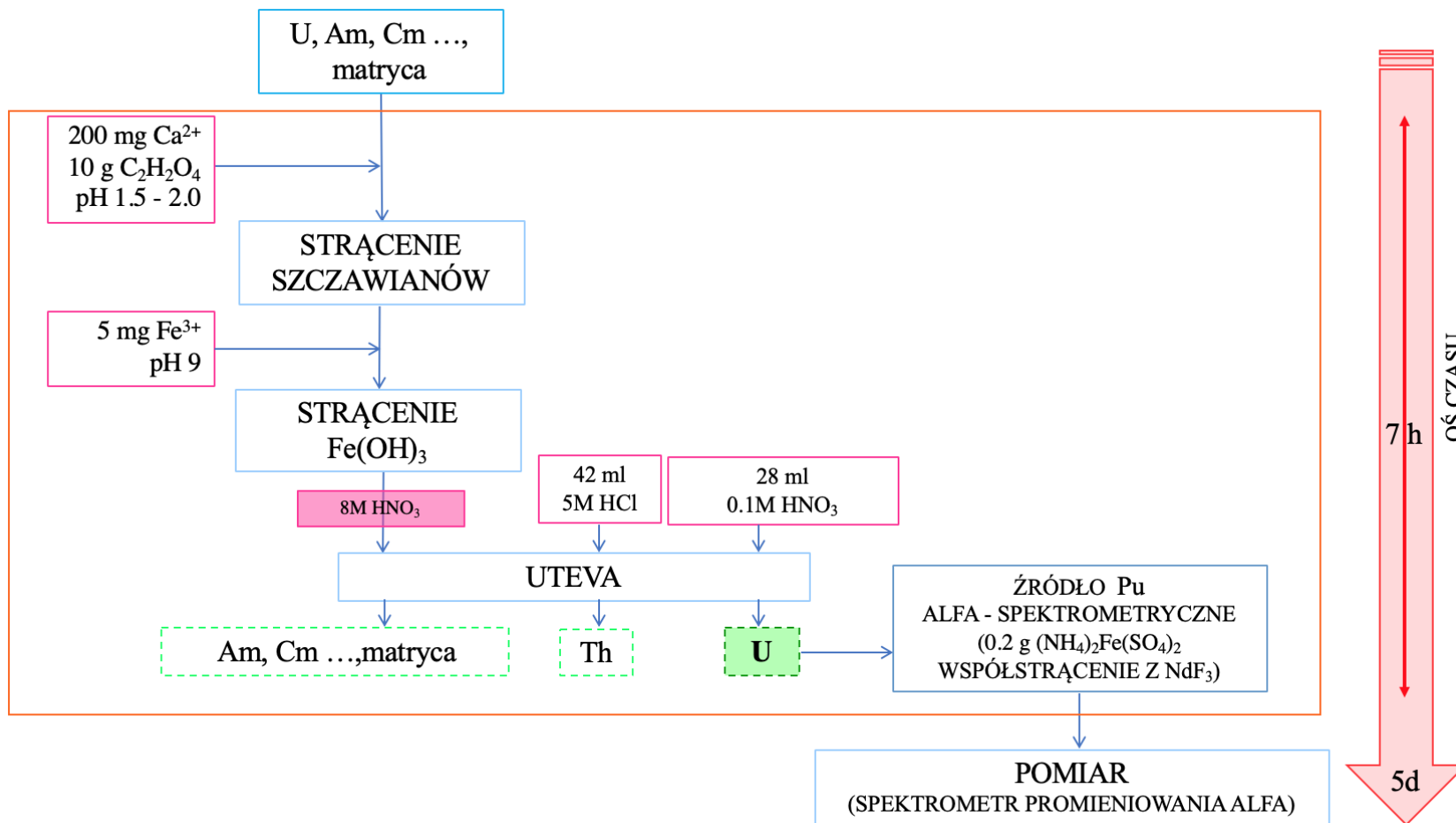
Tablica 2.3: Stężenia aktywności ^{238}Pu oraz $^{239+240}\text{Pu}$ w materiałach referencyjnych: IAEA 375 oraz NIST 4350B i NIST 4354.

Materiał referencyjny		IAEA 375
Dane certyfikowane		C [Bq/kg]; 95 % Przedział ufności
	^{238}Pu	0.071; 0.056 - 0.085
	$^{239+240}\text{Pu}$	0.30 ; 0.26 - 0.34
Wartości obliczone		C [Bq/kg]
	^{238}Pu	0.0817 ± 0.0162
	$^{239+240}\text{Pu}$	0.331 ± 0.040
Materiał referencyjny		NIST 4350B
Dane certyfikowane		C [Bq/kg]; 95 % Przedział ufności
	^{238}Pu	0.013; 0.0107 - 0.0152
	$^{239+240}\text{Pu}$	0.508 ; 0.479 - 0.537
Wartości obliczone		C [Bq/kg]
1	$^{239+240}\text{Pu}$	0.501 ± 0.044
2	$^{239+240}\text{Pu}$	0.514 ± 0.056
Wartości obliczone		C [Bq/kg]
1	^{238}Pu	0.0143 ± 0.0076
2	^{238}Pu	0.0118 ± 0.0068
Materiał referencyjny		NIST 4354
Dane certyfikowane		C [Bq/kg]; 95 % Przedział ufności
	^{238}Pu	0.26; 0,161 - 0,296
	$^{239+240}\text{Pu}$	4.00 ; 3.28 - 4.28
Wartości obliczone		C [Bq/kg]
	^{238}Pu	0.148 ± 0.034
	$^{239+240}\text{Pu}$	3.48 ± 0.24

Wartości skorygowane na dzień referencji podany w certyfikatach.

Metodyka wydzielenia U - 2 etap metody sekwencyjnej oraz wyznaczenie stosunku aktywności izotopów U

Materiałem wyjściowym do analiz izotopów U w próbkach środowiskowych z prefektury Fukushima była jedna z frakcji próbek otrzymanych po separacji Pu (Dodatek B, rys.2.6). Pełna procedura została przedstawiona w Dodatku B oraz na rys. 2.10. W pierwszym kroku usuwano matrycę poprzez strącanie szczawianów oraz $\text{Fe}(\text{OH})_3$ a następnie dokonywano separacji U przy użyciu chromatografii ekstrakcyjnej z żywicą UTEVA w oparciu o zależności objętościowego współczynnika podziału pierwiastków od molarności roztworu deponowanego na żywicy [112]. Źródła alfa - spektrometryczne U przygotowywano podobnie jak w przypadku Pu metodą współstrącania z NdF_3 wcześniej jednak zmieniając stopień utlenienia jonów U z VI na IV (który współstrąca się z NdF_3) poprzez dodanie reduktora w postaci soli Mohra.



Rysunek 2.10: Schemat etapu procedury sekwencyjnej z wydzielenia U z materiału próbek środowiskowych wykorzystanej w badaniach w QST.

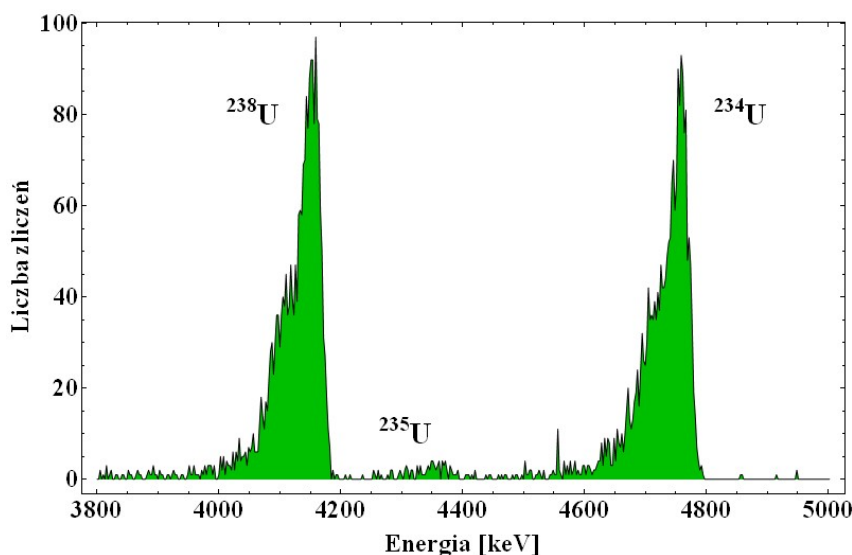
W początkowej fazie przygotowań metodycznych, wykorzystanie U w badaniach nie było przewidziane z uwagi na brak dostępu do znacznika U i tym samym braku kontroli nad wydajnością chemiczną procedury. Niemniej jednak wyniki analiz alfa - spektrometrycznych posłużyły do wyznaczenia stosunków aktywności ^{238}U i ^{234}U oraz ^{235}U i ^{238}U na podstawie liczby zliczeń w pikach. Podstawowe dane związane z rozpadem wybranych izotopów U zostały zestawione w tab. 2.4.

Tablica 2.4: Zestawienie wybranych izotopów uranu i danych dotyczących ich rozpadów alfa ©IAEA Nuclear Data Section.

A	$T_{1/2}$	Typ rozpadu	E [keV]	I [%]
234	2.455E+5 (6) y	α	4722.4 (14), 54774.6 (14)	28.42 (9), 71.38 (16)
235	7.04E+8 (1) y	α	4215.8 (5), 4364.3 (4), 4395.4 (4)	6.01 (16), 18.92 (14), 57.73 (24)
238	4.468E+9 (6) y	α	4038 (5), 4151 (5), 4198 (3)	0.078 (12), 20.9 (27), 79.0 (27)

A-liczba atomowa, $T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania, I-prawdopodobieństwo emisji, liczby w nawiasach oznaczają niepewność

Przykład widma U zaprezentowano na rys. 2.11.



Rysunek 2.11: Widmo frakcji U próbki FUK9, czas pomiaru 603 816 s, spektrometr promieniowania alfa Alpha Ensemble, ORTEC z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm².

Szacowanie stosunków aktywności izotopów U przeprowadzono na podstawie poniższego równania:

$$R_{ij} = \frac{\frac{N_{is}}{t_s} - \frac{N_{it}}{t_t}}{\frac{N_{js}}{t_s} - \frac{N_{jt}}{t_t}} \quad (2.9)$$

gdzie i, j - wybrane izotopy U tj. ^{234}U , ^{235}U lub ^{238}U .

Do obliczeń wykorzystywano tylko wyniki analiz widm (liczby zliczeń w piku), które były większe od limitów detekcji wyznaczanych również na podstawie wzoru Currie:

$$LD_i = \frac{2.706 + 4.653 \sqrt{\frac{N_{it}}{t_t}} t_s}{t_s} \quad (2.10)$$

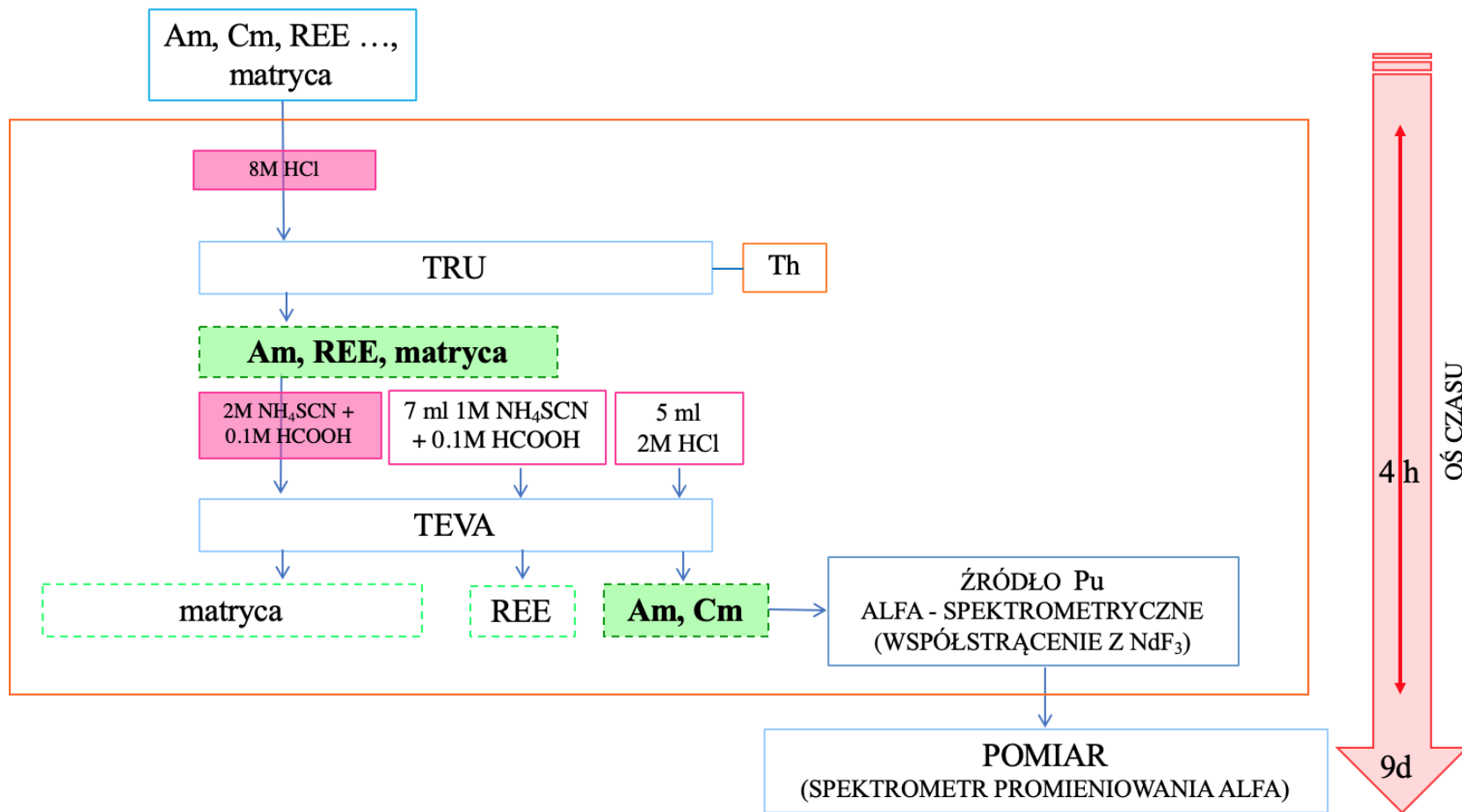
Czas pomiarów źródeł U mieścił się w zakresie od 2 do 16 dni, a średnia wynosiła 5 dni. Sprawdzenia poprawności przeprowadzonej procedury określono również w oparciu o stosunki izotopowe w materiałach referencyjnych (wykorzystując do obliczeń dane z certyfikatów). Wyniki zostały zebrane w tab. 2.5.

Tablica 2.5: Stosunki aktywności $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ oraz $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ w materiałach referencyjnych: IAEA 375 oraz NIST 4350B i NIST 4354.

Materiał referencyjny		IAEA 375
Dane certyfikowane		95 % Przedział ufności
	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$	0.98; 0.63 - 1.32
	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	-
Wartości obliczone		
	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$	0.905 ± 0.104
	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.0254 ± 0.0146
Materiał referencyjny		NIST 4350B
Dane certyfikowane		95 % Przedział ufności
	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$	0.93; 0.80 - 1.1
	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.055 ; 0.047 - 0.063
Wartości obliczone		
1	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$	0.930 ± 0.100
2	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$	0.919 ± 0.060
Wartości obliczone		
1	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.054 ± 0.020
2	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.0482 ± 0.0114
Materiał referencyjny		NIST 4354
Dane certyfikowane		95 % Przedział ufności
	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$	0.92; 0.82 - 1.01
	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.0431 ; 0.0381 - 0.0481
Wartości obliczone		
	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$	1.000 ± 0.092
	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.0346 ± 0.0138

Metodyka wydzielenia Am i Cm - 3 etap metody sekwencyjnej oraz oznaczanie ^{241}Am i ^{244}Cm w próbkach

Trzeci ostatni etap metody sekwencyjnej był poświęcony wydzieleniu Am (rys. 2.13). Został on zaprojektowany tak by pozbyć się śladów Th (^{228}Th : $T_{1/2}=1.9116(16)$ y, E_α : 5340.36 (15) keV, 5423.15 (22) keV), które interferowałyby z sygnałem ^{241}Am oraz ziem rzadkich (REE), które wpłynęłyby na jakość uzyskanego widma (Dodatek B, rys. 2.12).



Rysunek 2.12: Schemat etapu procedury sekwencyjnej z wydzielenia Am, Cm z materiału próbek środowiskowych wykorzystanej w badaniach w QST.

W tym celu w oparciu o dane udostępnione przez producenta [113], [114] zastosowano podwójną chromatografię ekstrakcyjną. W pierwszym kroku użyto żywicy TRU (retencja Th na kolumnie) zaś w drugim żywicy TEVA (separacja Am od REE). Źródła alfa - spektrometryczne zostały przygotowane tak jak w przypadku Pu (metoda współstrącania z NdF₃). Czas pomiaru źródeł Am mieścił się w przedziale od 5 do 15 dni (średnia 8 dni). Stężenia aktywności ²⁴¹Am zostały oszacowane na podstawie równania 2.6 a MDC zgodnie z zależnością 2.7. Powyższe obliczenia wykonano w oparciu o znacznik (²⁴³Am), którego aktywność dodawana do próbek mieściła się w przedziale od 0.00581 Bq do 0.01187 Bq a średnia wynosiła 0.00787 Bq. Wyniki analiz dla materiałów referencyjnych (dla potwierdzenia poprawności przeprowadzonych badań) zostały zebrane w tab. 2.6.

Tablica 2.6: Stężenia aktywności ²⁴¹Am w materiałach referencyjnych: IAEA 375, NIST 4350B i NIST 4354.

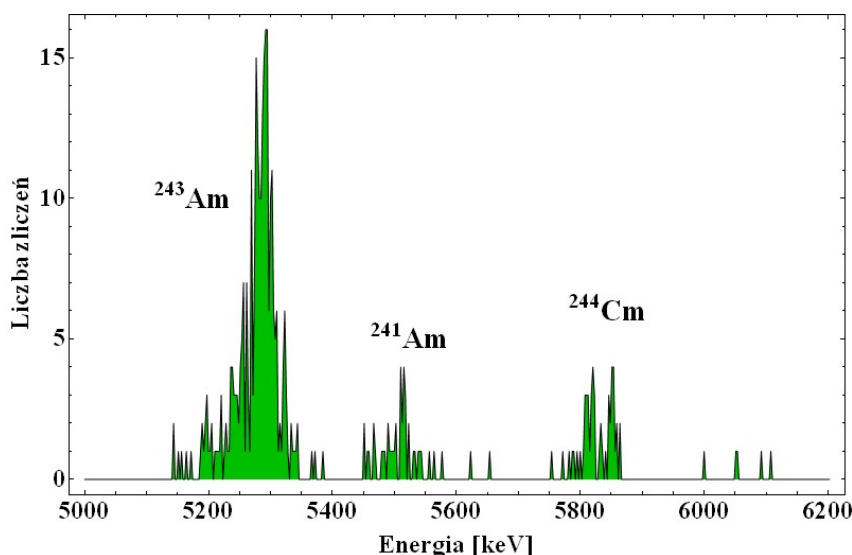
Materiał referencyjny		IAEA 375
Dane certyfikowane		C [Bq/kg] 95 % Przedział ufności
	²⁴¹ Am	0.13 ; 0.11 - 0.15*
Wartości obliczone		
1	²⁴¹ Am	0.309 ± 0.044
Materiał referencyjny		NIST 4350B
Dane certyfikowane		C [Bq/kg] 95 % Przedział ufności
	²⁴¹ Am	0.15 ; 0.119 - 0.182
Wartości obliczone		
1	²⁴¹ Am	0.207 ± 0.046
2	²⁴¹ Am	0.218 ± 0.078
Materiał referencyjny		NIST 4354
Dane certyfikowane		C [Bq/kg] 95 % Przedział ufności
	²⁴¹ Am	1.1 ; 0.21 - 1.43
Wartości obliczone		
1	²⁴¹ Am	1.30 ± 0.26
2	²⁴¹ Am	1.34 ± 0.36

* Użyty materiał zawiera izotopowe ślady awarii w Czarnobylu, w związku z tym wartość stężenia aktywności podana dla ²⁴¹Am na rok 1991 powinna być uzupełniona o wartość dla ²⁴¹Am jaki powstał między 1991 r. a 2011 r. z rozpadu ²⁴¹Pu. Z uwagi na brak danych na temat ²⁴¹Pu nie można przeprowadzić takich oszacowań. Można jedynie stwierdzić, że wartość otrzymana w 2011 r. powinna być większa niż wartość referencyjna.

Wśród analizowanych widm znalazły się takie, w których oprócz spodziewanych sygnałów od ²⁴³Am oraz ²⁴¹Am pojawił się dodatkowa linia widmowa o energii 5 800 keV (rys. 2.13). Biorąc pod uwagę procedury radiochemiczne, jakim podlegała próbka, należało wykluczyć obecność izotopów pierwiastków, które uległy separacji od Am w trakcie stosowanych procedur. Właściwości chemiczne szukanego pierwiastka musiały być podobne do Am. Takim kandydatem stał się Cm tym bardziej, że jego istnienie nie było nieprawdopodobne. W rdzeniach reaktorów jądrowych, udział jego izotopów, wzrasta wraz ze stopniem wypalenia paliwa jądrowego [10]. Najbardziej znaczącymi wśród izotopów Cm, produkowanymi w paliwie jądrowym są: ²⁴²Cm, ²⁴³Cm oraz ²⁴⁴Cm. Wszystkie one powstają m.in. jako produkty reakcji wychwytu neutronu kolejno przez jądro ²⁴¹Am, ²⁴²Cm i ²⁴³Cm (rys. 1.12). Najkrótszym czasem połowicznego zaniku wśród rozważanych izotopów charakteryzuje się ²⁴²Cm, dla którego czas ten wynosi 162.8 dni, podczas gdy dla ²⁴³Cm oraz ²⁴⁴Cm odpowiednio 29.1 lat i 18.1 lat (tab. 2.7), przy czym izotopy ²⁴³Cm oraz ²⁴⁴Cm emitują cząstki alfa o szukanej energii (tab.

2.7). Z uwagi na brak sygnału dla energii 5991.8 keV wykluczono przypadek ^{243}Cm .

Za możliwością separacji Cm wraz z frakcją Am przemawiają zarówno właściwości chemiczne jak i atomowe obu pierwiastków (III stopień utlenienia w roztworach i zbliżone promienie jonowe) oraz badania metodyczne [115], które pokazały brak różnic w separacji Am i Cm przy użyciu żywic ekstrakcyjnych TRU i TEVA w kwasach o stosowanej w procedurze mowłości. Stężenie aktywności ^{244}Cm obliczano przy wykorzystaniu aktywności ^{243}Am , który był traktowany jako znacznik. Wyniki obliczeń zostały zaprezentowane w tab. 2.8.



Rysunek 2.13: Widmo frakcji Pu próbki FUK9, czas pomiaru 1120162 s, spektrometr promieniowania alfa Alpha Ensemble, ORTEC z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm².

Tablica 2.7: Zestawienie wybranych izotopów uranu i danych dotyczących ich rozpadów alfa ©IAEA Nuclear Data Section.

A	$T_{1/2}$	Typ rozpadu	E [keV]	I [%]
243	29.1 (1) y	α	5742.1 (9), 5785.2 (9), 5991.8 (15)	11.5 (5), 73.0 (23), 5.68 (20)
244	18.1 (1) y	α	5762.64 (3), 5804.77 (5)	23.1 (1), 76.9 (1)

A-liczba atomowa, $T_{1/2}$ - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania, I-prawdopodobieństwo emisji, liczby w nawiasach oznaczają niepewność

2.1.3 Wyniki analiz alfa - i gamma - spektrometrycznych

Zawartość materii organicznej w analizowanych próbkach mieściła się w przedziale pomiędzy 3 % a 46 %, przy czym wyraźnie zaznaczył się podział pomiędzy próbkami gleby i materiału naniesionego a próbkami ściółki leśnej. Dla pierwszej grupy materia organiczna zmieniała się w przedziale od 3 % do 22 % ze średnią 11% podczas gdy dla drugiej zakres zmienności wynosił 7 % - 46 % ze średnią 29% (tab. 2.8).

Większe zróżnicowanie (z uwzględnieniem rodzaju próbki) zostało zaobserwowane dla stężeń aktywności ^{134}Cs oraz ^{137}Cs . Wartości oszacowane dla obydwu izotopów były zbliżone. Największe stężenia aktywności zostały oszacowane dla próbek materiału naniesionego

od $0.264 \text{ MBq kg}^{-1}$ do 4.45 MBq kg^{-1} mniejsze dla ściółki leśnej od $0.0967 \text{ MBq kg}^{-1}$ do 5.49 MBq kg^{-1} a najmniejsze dla gleby od 110 Bq kg^{-1} do $0.110 \text{ MBq kg}^{-1}$.

Podobny trend wykazały wyniki otrzymane dla izotopów alfa - promieniotwórczych. Średnie stężenia aktywności dla ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , oraz stosunki aktywności ^{238}U i ^{234}U oraz ^{235}U i ^{238}U dla: 1. gleby wyniosły odpowiednio: 0.017 Bq kg^{-1} , $0.1168 \text{ Bq kg}^{-1}$, $0.0647 \text{ Bq kg}^{-1}$, 1.0058 oraz 0.0481 , 2. dla ściółki leśnej: $0.0665 \text{ Bq kg}^{-1}$, $0.1134 \text{ Bq kg}^{-1}$, ^{241}Am został zidentyfikowany tylko w jednej próbce (FUK10) zaś pomiary źródeł frakcji U nie zostały wykonane, 3. dla materiału naniesionego: $0.2715 \text{ Bq kg}^{-1}$, $0.1690 \text{ Bq kg}^{-1}$, $0.0497 \text{ Bq kg}^{-1}$, 1.0499 oraz 0.0563 .

^{244}Cm zidentyfikowano w 4 próbkach materiału naniesionego oraz 3 próbkach ściółki leśnej odpowiednio na poziomach 0.797 Bq kg^{-1} oraz 0.707 Bq kg^{-1} (wartości średnie).

Omówienie otrzymanych wyników w kontekście danych literaturowych oraz ich interpretacja będą miały miejsce w rozdz. 3. W przypadkach gdy omawiane były wyniki zestawów o liczbie danych $3 \leq n \leq 7$, wykorzystywano statystykę dla zbiorów małych liczb.

Tablica 2.8: Wyniki analiz próbek pobranych na terenie prefektury Fukushima pomiędzy 2011 r. a 2015 r. tj: zawartość materii organicznej [%], stężenia aktywności: ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am [Bq kg^{-1}] oraz stosunki aktywności $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ i $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (dane skorygowane na datę 11.03.2011).

Lp.	Kod próbki	Materia organiczna [%] ¹	C ^{134}Cs [Bq kg^{-1}] ²	C ^{137}Cs [Bq kg^{-1}]	C ^{238}Pu [Bq kg^{-1}]	C $^{239+240}\text{Pu}$ [Bq kg^{-1}]	C ^{241}Am [Bq kg^{-1}]	C ^{244}Cm [Bq kg^{-1}] ³	$^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ ⁴	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ⁴
1	FS1	10	10100 ± 1300	11720 ± 710	< 0.0049	0.0076 ± 0.0028	< 0.025		1.079 ± 0.064	0.048 ± 0.011
2	FS2	11	9700 ± 1200	11260 ± 680	0.0045 ± 0.0017	0.0222 ± 0.0034	< 0.052		0.993 ± 0.046	0.042 ± 0.008
3	FS3	11	110000 ± 15000	113200 ± 7400	0.0053 ± 0.0026	0.0455 ± 0.0055	< 0.076		1.070 ± 0.060	0.051 ± 0.010
4	FS4	8	13800 ± 1700	16300 ± 990	< 0.0033	0.0044 ± 0.0018	< 0.097		1.004 ± 0.075	0.062 ± 0.015
5	FS5	4	540 ± 100	618 ± 38	< 0.0049	0.0049 ± 0.0028	< 0.011		1.108 ± 0.053	0.052 ± 0.008
6	FS6	9	411 ± 95	460 ± 29	0.0051 ± 0.0025	0.150 ± 0.010	< 0.012		0.887 ± 0.039	0.057 ± 0.009
7	FS7	4	3900 ± 520	4510 ± 270	< 0.0065	0.0347 ± 0.0056	< 0.016		1.006 ± 0.038	0.054 ± 0.008
8	FS8	21	4080 ± 570	4700 ± 290	< 0.005	0.0805 ± 0.0076	0.038 ± 0.015		0.961 ± 0.036	0.049 ± 0.008
9	FS9	22	5730 ± 760	6430 ± 390	0.0105 ± 0.0039	0.21595 ± 0.018	< 0.061		1.055 ± 0.090	0.040 ± 0.018
10	FS10	3	9600 ± 1200	9730 ± 590	< 0.0059	< 0.0045	0.018 0.007		1.046 0.050	0.048 0.009
11	FS11	9	1430 ± 220	1720 ± 110	< 0.005	0.0109 ± 0.0035	0.020 ± 0.008		0.984 ± 0.070	0.051 ± 0.014
12	HN1	12	1740 ± 120	1960 ± 120	0.067 ± 0.0026	0.143 ± 0.011	0.075 ± 0.023			
13	HN3	11	130 ± 15	174 ± 12	0.0059 ± 0.0023	0.141 ± 0.010	< 0.066		1.025 ± 0.036	0.051 ± 0.006
14	HN5	12	4130 ± 260	4730 ± 290	< 0.0038	0.1101 ± 0.0082	0.053 ± 0.018		0.886 ± 0.035	0.040 ± 0.006
15	HN11	14	9120 ± 640	10870 ± 740	0.0051 ± 0.002	0.155 ± 0.011	0.095 ± 0.039			
16	HN12	12	4850 ± 310	5640 ± 350	0.0096 ± 0.0025	0.1008 ± 0.0081	0.047 ± 0.017		1.65 ± 0.18	
17	HN13	19	109.5 ± 9.1	134 ± 8.3	0.007 ± 0.0041	0.207 ± 0.014				
18	HN14	11	19300 ± 1300	22300 ± 1500	< 0.0041	0.0121 ± 0.0032	0.049 ± 0.022		1.044 ± 0.097	0.041 ± 0.014
19	FS1_1	10	545 ± 34	663 ± 27	0.0041 ± 0.0021	0.1364 ± 0.0097	0.045 ± 0.016		0.873 ± 0.073	0.058 ± 0.016
20	FS5_1	10	400 ± 28	543 ± 24	< 0.0042	0.1183 ± 0.0088	0.082 ± 0.039		0.967 ± 0.052	0.046 ± 0.009
21	FS7_1	6	53200 ± 1500	61830 ± 880	0.0922 ± 0.0086	0.298 ± 0.019	0.098 ± 0.035		0.970 ± 0.048	0.036 ± 0.008
22	FS7_4	7	24970 ± 720	24970 ± 360	0.0087 ± 0.0026	0.260 ± 0.017	0.099 ± 0.025		0.842 ± 0.047	0.051 ± 0.011
23	FUK1	7	2840 ± 190	3460 ± 210	< 0.0039	0.1034 ± 0.0085	< 0.051		0.899 ± 0.080	0.032 ± 0.014
24	FUK2	5	30900 ± 2100	41000 ± 2800	0.0085 ± 0.0028	0.0246 ± 0.0039	< 0.036		0.82 ± 0.15	
25	FUK3	14	11180 ± 790	13370 ± 910	0.0041 ± 0.0021	0.0913 ± 0.0076	0.055 ± 0.021		0.997 ± 0.049	0.047 ± 0.009
26	FUK4	18	12850 ± 920	15600 ± 1100	< 0.018	0.443 ± 0.048	0.132 ± 0.050		0.971 ± 0.061	0.055 ± 0.013
27	FUK5	11	983000 ± 66000	1235000 ± 83000	0.103 ± 0.012	0.059 ± 0.011	0.032 ± 0.015		1.069 ± 0.055	0.057 ± 0.010
28	FUK6	10	264000 ± 17000	322000 ± 22000	0.0474 ± 0.0078	0.0398 ± 0.0076	0.031 ± 0.009	0.0289 ± 0.009	0.981 ± 0.057	0.054 ± 0.011
29	FUK7	13	4450000 ± 300000	5340000 ± 360000	0.428 ± 0.032	0.281 ± 0.023	0.044 ± 0.009	0.060 ± 0.011	1.046 ± 0.097	
30	FUK8	17	4320000 ± 290000	5200000 ± 350000	0.545 ± 0.04	0.339 ± 0.027	0.051 ± 0.012	0.098 ± 0.018	1.104 ± 0.150	0.071 ± 0.030
31	FUK9	21	1233000 ± 85000	1490000 ± 100000	0.234 ± 0.017	0.126 ± 0.011	0.090 ± 0.021	0.132 ± 0.028	1.049 ± 0.033	0.043 ± 0.005
32	FUK10	29	96700 ± 6600	112500 ± 7600	0.0807 ± 0.0088	0.209 ± 0.016	0.125 ± 0.041	0.094 ± 0.028		
33	FUK11	7	128800 ± 8700	157000 ± 11000	0.039 ± 0.0045	0.0638 ± 0.0058	< 0.017	0.033 ± 0.012		
34	FUK12	46	229000 ± 16000	271000 ± 18000	0.0184 ± 0.0034	0.0687 ± 0.0062	< 0.050			
35	FUK13	34	549000 ± 38000	649000 ± 44000	0.1278 ± 0.0097	0.1126 ± 0.0086	< 0.110	0.085 ± 0.035		

¹ - niepewność na poziomie 10%, ² - niepewności na poziomie 2σ , ³ - wyniki dla próbek, w widmach których zarejestrowano sygnały od ^{244}Cm , ⁴ - brak wyniku oznacza: 1. poziom sygnału zarejestrowany w widmie od danego izotopu U poniżej limitu detekcji lub 2. brak pomiaru

2.2 Model n źródeł (nSM) - weryfikacja koegzystencji śladów różnych źródeł w próbkach środowiskowych

Jednym z największym wyzwani badań związanych z identyfikacją izotopów promieniotwórczych w środowisku jest próba wskazania ich źródeł. Przypadki najtrudniejsze do weryfikacji a z drugiej strony najciekawsze to takie, w których doszło do zmieszania śladów izotopowych z wielu źródeł pod wpływem procesów zachodzących w środowisku (migracji, wymywania, resuspensji, etc.). Jednym ze sposobów rozwiązywania „zagadki” pochodzenia izotopów promieniotwórczych jest zastosowanie modeli teoretycznych. Do przypadku FDNPP użyto uogólniony model n źródeł (nSM - n Sources Model), którego wersja 2SM (Two Sources Model) i 3SM (Three Sources Model) została zastosowana i zweryfikowana w pracach wcześniejszych [43], [116]. Idea modelu opiera się na wykorzystaniu stosunków aktywności lub mas izotopów (wyznaczonych na podstawie badań empirycznych lub/i teoretycznych) charakteryzujących jednoznacznie wybrane źródła promieniotwórcze. Model ten to układ n - liniowo niezależnych równań wyrażających zależności pomiędzy frakcjami danych izotopów pochodzącymi z zadanych/wybranych źródeł. Wersja nSM przyjmuje postać:

$$a\alpha = A \quad (2.11)$$

gdzie:

$$a = \begin{bmatrix} a_{11} & \cdots & a_{1j} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{i1} & \cdots & a_{ij} \end{bmatrix}, \quad \alpha = \begin{bmatrix} \alpha_1 \\ \vdots \\ \alpha_j \end{bmatrix}, \quad A = \begin{bmatrix} A_1 \\ \vdots \\ A_i \end{bmatrix}$$

przy czym

$$1 \leq i \leq n, 1 \leq j \leq n, i_{max} = j_{max}$$

i - liczba porządkowa przypisana danemu izotopowi; j - liczba porządkowa przypisana danemu źródłu izotopowemu, n - liczba wybranych źródeł = liczbie rozważanych izotopów, a_{ij} - stosunek aktywności i -tego izotopu do izotopu o $i = 1$ charakterystyczny dla j -tego źródła przy czym $a_{1j}=1$, α_j - frakcja aktywności izotopu o $i = 1$ związana z j -tym źródłem w próbce, A_i - obliczona na podstawie pomiarów aktywność i -tego izotopu w próbce.

2.2.1 Zastosowanie modelu 2SM do serii wyników własnych

W ramach niniejszej pracy użyto modelu 2SM do oszacowania wielkości frakcji ^{238}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$ związanej z FDNPP w próbkach własnych. Wybór stopnia modelu ($n=2$) jak i izotopów, na bazie których dokonano obliczeń (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$) był podyktowany zarówno liczbą otrzymanych wyników powyżej MDC jak i abundancją izotopów Pu uwolnionych z FDNPP (tab.1.3). Wykorzystany układ równań miał postać:

$$\begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} \\ a_{21} & a_{22} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \end{bmatrix} \quad (2.12)$$

gdzie: $i = 1, 2$ przy czym 1 - $^{239+240}\text{Pu}$ zaś, 2 - ^{238}Pu . Założono, że w środowisku istnieją równoległe ślady 2 źródeł tj. GF oraz FDNPP (odpowiednio $j = 1, 2$) a także przyjęto dla nich charakterystyczne stosunki aktywności ^{238}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$. Stąd kolejne wyrazy macierzy

a : a_{21} i a_{22} wynosiły odpowiednio 0.037 (tab. 1.14) i 3.33 (największa opublikowana wartość stosunku aktywności izotopów ^{238}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$ wyznaczona dla próbki środowiskowej [117]) zaś a_{11} i a_{12} , jak to zostało przedstawione w ogólnych założeniach modelu nSM, były równe 1. Różnica wielkości stosunków aktywności dla obydwu źródeł (0.037 - GF i 3.33 - FDNPP) była tak duża, że dawała jednoznaczną możliwość odróżnienia ich śladów. A_1 i A_2 to wartości aktywności odpowiednio $^{239+240}\text{Pu}$ oraz ^{238}Pu obliczone na podstawie pomiarów dla każdej próbki. Rozwiązaniem układu równań były procentowe udziały danego źródła (GF i FDNPP) w aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ oszacowanej dla danej próbki, które wyrażały się zależnościami:

$$F_1 = \frac{\alpha_1}{A_1} = \frac{\frac{A_2}{A_1} - a_{22}}{a_{21} - a_{22}} 100\% \quad (2.13)$$

$$F_2 = \frac{\alpha_2}{A_1} = \frac{-\frac{A_2}{A_1} + a_{21}}{a_{21} - a_{22}} 100\% \quad (2.14)$$

Na tak otrzymane wyniki nałożono 2 warunki:

- $F_j - dF_j < 100\%$
- $F_j + dF_j > 0$

gdzie $j = 1, 2$, dF_j - niepewność zdefiniowanej powyżej frakcji $^{239+240}\text{Pu}$ dla wybranego (j - tego) źródła obliczona metodą różniczki zupełnej.

W kolejnym kroku szacowano aktywności frakcji $^{239+240}\text{Pu}$ przynależnych każdemu z rozpatrywanych źródeł w danej próbce korzystając z zależności:

$$\alpha_1 = \frac{F_1 A_1}{100\%} \quad (2.15)$$

$$\alpha_2 = \frac{F_2 A_1}{100\%} \quad (2.16)$$

a wyniki musiały spełniać kolejny warunek $\alpha_j > d\alpha_j$, gdzie $d\alpha_j$ - niepewność aktywności frakcji $^{239+240}\text{Pu}$ od wybranego źródła obliczona metodą różniczki zupełnej.

Kombinację 2 źródeł przyjmowano za nieprawdziwą jeśli którakolwiek z dwóch frakcji $^{239+240}\text{Pu}$ (związana z GF lub FDNPP) nie spełniała warunków modelu.

Udział FDNPP w obliczonej dla każdej próbki aktywności ^{238}Pu - β_2 - oszacowano zaś korzystając ze stosunku aktywności charakteryzującego FDNPP $a_{22}=3.33$ według następującego równania:

$$\beta_2 = \alpha_2 \cdot a_{22} \quad (2.17)$$

przy czym udział procentowy tej frakcji (G_2) obliczano na podstawie wzoru:

$$G_2 = \frac{\beta_2}{A_2} 100\% \quad (2.18)$$

W tab. 2.9 zebrano wyniki otrzymane przy zastosowaniu opisanego powyżej modelu 2SM.

Tablica 2.9: Wyniki udziału procentowego oraz aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{238}Pu przynależnych FDNPP w analizowanych próbkach (tab.2.8) oszacowane przy zastosowaniu 2SM.

Lp.	Kod próbki	F $^{239+240}\text{Pu}$ [%]	C $^{239+240}\text{Pu}$ [Bq kg $^{-1}$]	G ^{238}Pu [%]	C ^{238}Pu [Bq kg $^{-1}$]
1	FS2	5.0 ± 2.6	0.00111 ± 0.00060	82 ± 55	0.0037 ± 0.0020
2	FS3	2.4 ± 1.9	0.00109 ± 0.00086	69 ± 64	0.0036 ± 0.0029
3	HN12	1.8 ± 0.8	0.00178 ± 0.00084	62 ± 33	0.0059 ± 0.0028
4	FS7_1	8.3 ± 1.1	0.0246 ± 0.0037	89 ± 16	0.082 ± 0.012
5	FUK2	9.4 ± 3.9	0.00231 ± 0.00103	90 ± 50	0.0077 ± 0.0034
6	FUK5	52 ± 11	0.0307 ± 0.0087	99 ± 30	0.102 ± 0.029
7	FUK6	35.1 ± 9.5	0.0139 ± 0.0046	98 ± 36	0.046 ± 0.015
8	FUK7	45.1 ± 5.4	0.127 ± 0.019	99 ± 16	0.423 ± 0.062
9	FUK8	47.6 ± 5.5	0.162 ± 0.023	99 ± 16	0.538 ± 0.076
10	FUK9	55.2 ± 6.5	0.070 ± 0.010	99 ± 16	0.232 ± 0.034
11	FUK10	10.6 ± 1.6	0.0222 ± 0.0038	91 ± 19	0.074 ± 0.013
12	FUK11	17.4 ± 2.9	0.0111 ± 0.0021	95 ± 21	0.0370 ± 0.0070
13	FUK12	7.0 ± 1.7	0.0048 ± 0.0013	87 ± 28	0.0160 ± 0.0042
14	FUK13	33.3 ± 3.9	0.0375 ± 0.0052	98 ± 15	0.125 ± 0.017

Spośród 23 próbek, dla których oznaczono stężenie aktywności ^{238}Pu powyżej MDC w 14 udało się zweryfikować obecność frakcji pochodzącej z FDNPP. Były to przede wszystkim próbki materiału naniesionego oraz ściółki leśnej. Frakcja $^{239+240}\text{Pu}$ związana z FDNPP stanowiła od 1.8% do 55.2% stężenia aktywności $^{239+240}\text{Pu}$. Znacznie wyższe wyniki zostały oszacowane dla ^{238}Pu a frakcja ta mieściła się w zakresie od 62% do 99%. Otrzymane wyniki zostaną szerzej skomentowane w rozdz. 3.

2.2.2 Zastosowanie modelu nSM do serii wyników literaturowych

Do momentu powstania niniejszej pracy, zwykło się traktować FDNPP, jako jedno źródło izotopów promieniotwórczych uwolnionych do ekosystemu lądowego i morskiego. Tymczasem biorąc pod uwagę przebieg zdarzeń w trakcie awarii (rozdz. 1.1.3) można domniemywać, że ślady FDNPP zdeponowane w środowisku powinny wykazywać heterogeniczność (pochodzenie z różnych źródeł/różnych reaktorów). W celu sprawdzenia powyższej tezy zastosowano model nSM w wersji 4SM, 3SM i 2SM. Użycie każdej z opcji miało swoje uzasadnienie: a) 4SM stanowił swego rodzaju filtr dla próbek, w których współistniałyby izotopowe ślady z bloku nr. 1 (B1), 2 (B2), 3 (B3) FDNPP i GF b) 3SM - dowolna kombinacja 3 - elementowa ze zbioru wymienionych wcześniej 4 źródeł c) 2SM dowolna 2-elementowa kombinacja ze zbioru 4 źródeł. Wszystkie możliwe warianty współistnienia źródeł zostały zestawione w tab. 2.10 zaś wykorzystane w dalszej części pracy stosunki aktywności charakteryzujące wybrane źródła izotopowe (elementy macierzy a) w tab. 2.11.

Wartości stosunków aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu , $^{243+244}\text{Cm}$ i ^{238}Pu oraz ^{242}Cm i $^{239+240}\text{Pu}$, $^{243+244}\text{Cm}$ i $^{239+240}\text{Pu}$ dla GF zostały przyjęte jako 0 z uwagi na fakt braku sygnału od izotopów Cm w środowisku Japonii przed awarią FDNPP.

Analizie heterogeniczności śladów FDNPP (za zgodą prof. M.Yamamoto) poddane zostały dane związane z próbkami materiału naniesionego („black substances”). Użyty zestaw danych (stężeń aktywności) był najbardziej kompletnym, dostępnym w literaturze [105] zestawem dotyczącym antropogenicznych izotopów promieniotwórczych, który został opracowany

Tablica 2.10: Zestawienie możliwych kombinacji 4, 3 i 2 źródeł izotopów promieniotwórczych w środowisku prefektury Fukushima ze zbioru 4-ro elementowego.

Lp.	4SM	3SM				2SM					
1	B1	B1	B1	B1	B2	B1	B2	B3	B1	B1	B2
2	B2	B2	B2	B3	B3	GF	GF	GF	B2	B3	B3
3	B3	B3	GF	GF	GF						
4	GF										

B1, B2 i B3 - blok FDNPP nr. 1, 2 i 3.

Tablica 2.11: Zestawienie przyjętych stosunków aktywności izotopów: ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{242}Cm i $^{243+244}\text{Cm}$ dla wybranych źródeł (na podstawie tab.1.14 i 1.3).

stosunki aktywności / źródła izotopowe	B1	B2	B3	GF
$^{239+240}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$	0.34	0.412	0.43	27.03
$^{242}\text{Cm} / ^{238}\text{Pu}$	18.97	4.28	56	0
$^{243+244}\text{Cm} / ^{238}\text{Pu}$	0.59	0.70	0.49	0
$^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$	2.92	2.39	2.32	0.037
$^{242}\text{Cm} / ^{239+240}\text{Pu}$	56.48	46.89	43.51	0
$^{243+244}\text{Cm} / ^{239+240}\text{Pu}$	1.71	1.68	1.13	0

w jednym z kilku dedykowanych do takich badań i mających pozwolenie na pobór i analizę tych materiałów laboratoriów. Cała analiza została przeprowadzona w oparciu o dane aktywności dla 105 próbek (materiału naniesionego) pobranych w latach 2012 i 2013 na obszarze prefektury Fukushima w kierunku północnym, północno - zachodnim i południowym od FDNPP, z okolic miast: Minamisōma, Namie, Ōkuma, Futaba miejscowości Iitate oraz obszaru położonego na południe od FDNPP (na wykresach oznaczanym jako "Południe"). Położenie geograficzne obszarów poboru próbek jak i ich znaczenie w kontekście wyników zostanie omówione w rozdziale 3.

4SM

Model nSM dla n=4, tak jak to zostało zaznaczone powyżej, został wykorzystany do wskazania w rozważanym zbiorze, tych próbek, w których mogłyby współistnieć izotopowe ślady 3 bloków FDNPP oraz GF (tab.2.10). Przyjęty porządek rozważanych izotopów i źródeł został przedstawiony odpowiednio w tab. 2.12 oraz 2.13. Wzięto pod uwagę, dwa warianty 4SM, różniące się kolejnością izotopów Pu.

Tablica 2.12: Porządek rozważanych izotopów w modelu 4SM.

Wariant/i	1	2	3	4
A	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{242}Cm	$^{243+244}\text{Cm}$
B	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{242}Cm	$^{243+244}\text{Cm}$

Tablica 2.13: Porządek rozważanych źródeł promieniotwórczych w modelu 4SM.

Wariant 4SM/j	1	2	3	4
A i B	B1	B2	B3	GF

Elementy macierzy a były tworzone zgodnie ze wskazówkami zamieszczonymi pod rów. 2.11, czyli np.: wyraz a_{32} w wariancie A, wyrażał stosunek aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu (tab. 2.12) dla bloku nr. 2 (tab. 2.13), którego wartość została zaczerpnięta z tab. 2.11. Pamiętać należy, że wyrazy a_{1j} przyjmowały wartość 1 (założenie nSM). Korzystając z faktu, że macierz a , zarówno w pierwszym jak i drugim wariancie, jest macierzą kwadratową i nieosobliwą, otrzymane układy równań rozwiązano metodą wyznaczników (korzystając z twierdzenia Cramera), a udziały kolejnych źródeł w całkowitej aktywności ^{238}Pu oraz $^{239+240}\text{Pu}$ (oszacowanej na podstawie pomiarów) obliczano na podstawie wzorów:

$$F_j = \frac{\det(a_j)}{\det(a)} 100\% \quad (2.19)$$

gdzie: $\det(a)$ - wyznacznik macierzy a , $\det(a_j)$ - wyznacznik macierzy, w której j -ta kolumna macierzy a została zastąpiona przez macierz A .

Dodatkowo na wyniki zostały nałożone warunki takie jak w przypadku 2SM (warunki dla sum, różnic, relacji pomiędzy wartościami i niepewnościami szacowanych aktywności) a aktywność ^{238}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$ (wariant A i B) stowarzyszoną z danym (j -tym) źródłem izotopowym obliczano na podstawie zależności:

$$\alpha_j = \frac{F_j A_1}{100\%} \quad (2.20)$$

Z uwagi na brak dla 11 próbek stężeń aktywności izotopów Cm powyższą analizę przeprowadzono bazując na 94 zestawach danych. Analiza nie dostarczyła pozytywnych wyników. Oznacza to, że na podstawie udostępnionych danych dla próbek materiału naniesionego i przyjętych wartości stosunków aktywności odpowiednich izotopów (tab.2.11), nie stwierdzono równoległego istnienia izotopowych śladów reaktora nr. 1, 2, 3 FDNPP oraz GF.

3SM

Model 3SM, zakładający współistnienie śladów 3 wybranych źródeł izotopowych, został użyty w 4 wariantach (tab. 2.14) dla izotopów Pu i Cm wg. porządku przedstawionego w tab. 2.15.

Tablica 2.14: Porządek rozważanych źródeł promieniotwórczych w modelu 3SM.

wariant 3SM/j	1	2	3
A	B1	B2	B3
B	B1	B2	GF
C	B1	B3	GF
D	B2	B3	GF

Tablica 2.15: Porządek rozważanych izotopów promieniotwórczych w modelu 3SM.

wariant 3SM/i	1	2	3
A, B i C	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{242}Cm

Elementy macierzy a , sposób rozwiązania oraz warunki narzucone na wyniki i niepewności były analogiczne do tych prezentowanych dla modelu 4SM i 2SM. Otrzymane wyniki reprezentowały frakcje ^{238}Pu stowarzyszone z wybranymi źródłami izotopowymi.

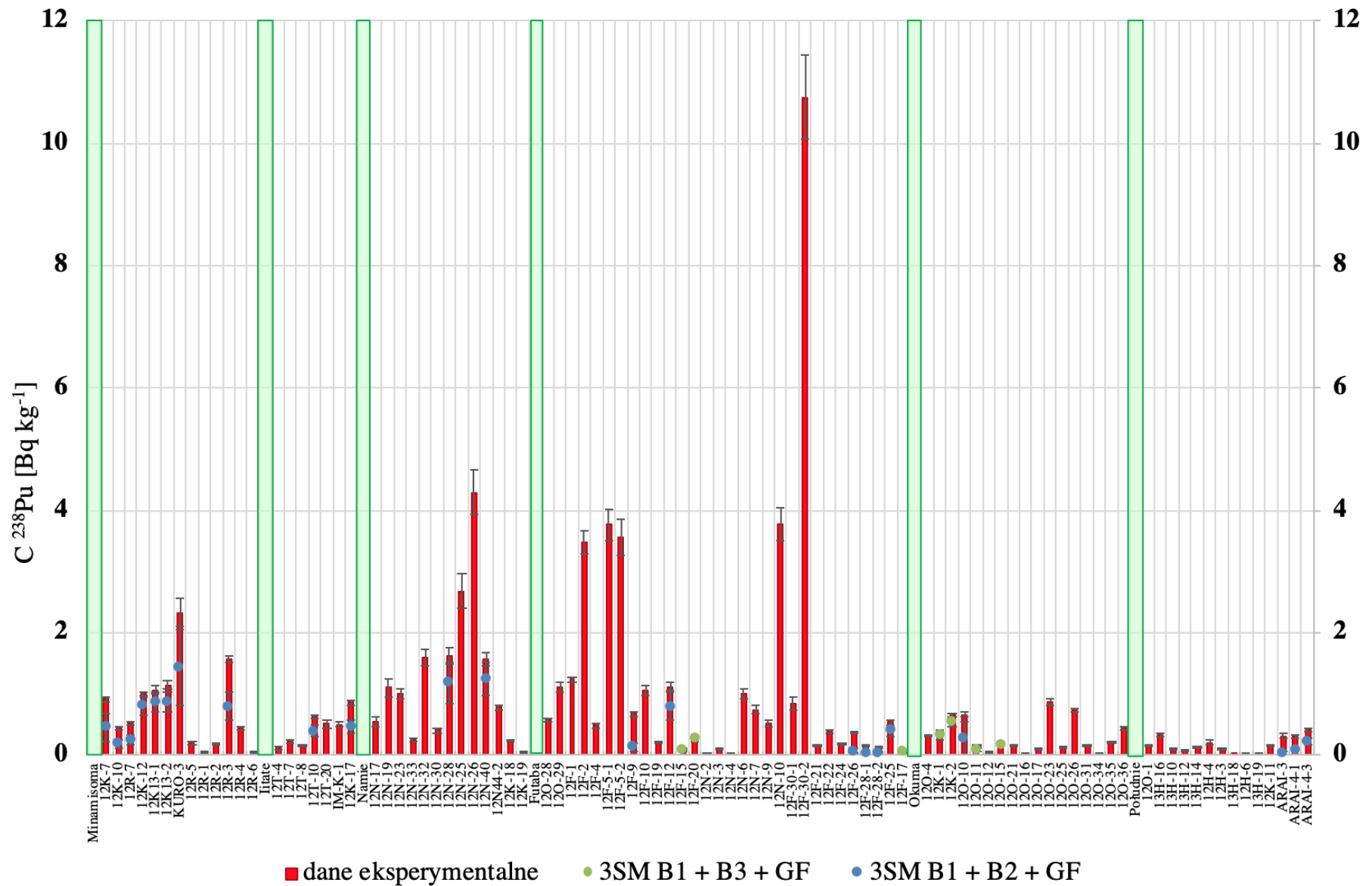
Model 3SM tak jak 4SM został zastosowany do 94 przypadków. Wariant A 3SM przyniósł negatywny wynik dla całego zbioru danych co oznacza, że uwzględniając przyjęte założenia, wśród rozważanych próbek nie ma takich, które zawierałyby jednocześnie izotopowe ślady aktywności pochodzące z 3 bloków FDNPP. Pozostałe rozpatrywane warianty 3SM (B, C i D), w których jednym ze źródeł zawsze był GF przyniosły rozwiązania dla 49 z rozważanych próbek (dla 45 próbek nie znaleziono spełniających założenia kombinacji źródeł izotopowych). Dla 23 zestawów danych spośród 49 otrzymano pozytywne wyniki równocześnie z 2 wariantów 3SM tj. B i D lub C i D nigdy dla B i C. Wyniki analiz zostały przedstawione na rys. 2.14 - 2.16 przy czym udział frakcji ^{238}Pu pochodzącej z bloku nr. 1 FDNPP jako rezultat 3SM w wariacie B i C prezentuje wykres 2.14, udział frakcji pochodzącej z bloku nr. 2 FDNPP w wariacie B i D wykres 2.15 zaś udział frakcji stowarzyszonej z blokiem nr. 3 FDNPP oszacowanej przy zastosowaniu 3SM w wariacie C i D wykres 2.16. Wariant modelu 3SM, za pomocą którego udało się rozwikłać największą liczbę przypadków to model zbudowany w oparciu o źródła: B2, B3 i GF (tab.2.16)

Podstawowe dane statystyczne opisujące zbiory uzyskanych wyników (frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami izotopowymi) zostały zestawione w tab. 2.16. W każdym wariacie zastosowania modelu 3SM najmniejszą frakcją ^{238}Pu była frakcja GF, która nie przekraczała 4.1%. Przeprowadzona analiza pokazała również, że najmniejszy udział w śladach związanych z awarią jądrową miał blok nr. 3 FDNPP.

Tablica 2.16: Zestawienie podstawowych danych statystycznych opisujących zbiory uzyskanych rozwiązań za pomocą 3 wariantów 3SM (procentowy udział frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami [%]) dla zestawów wyników próbek materiału naniesionego .

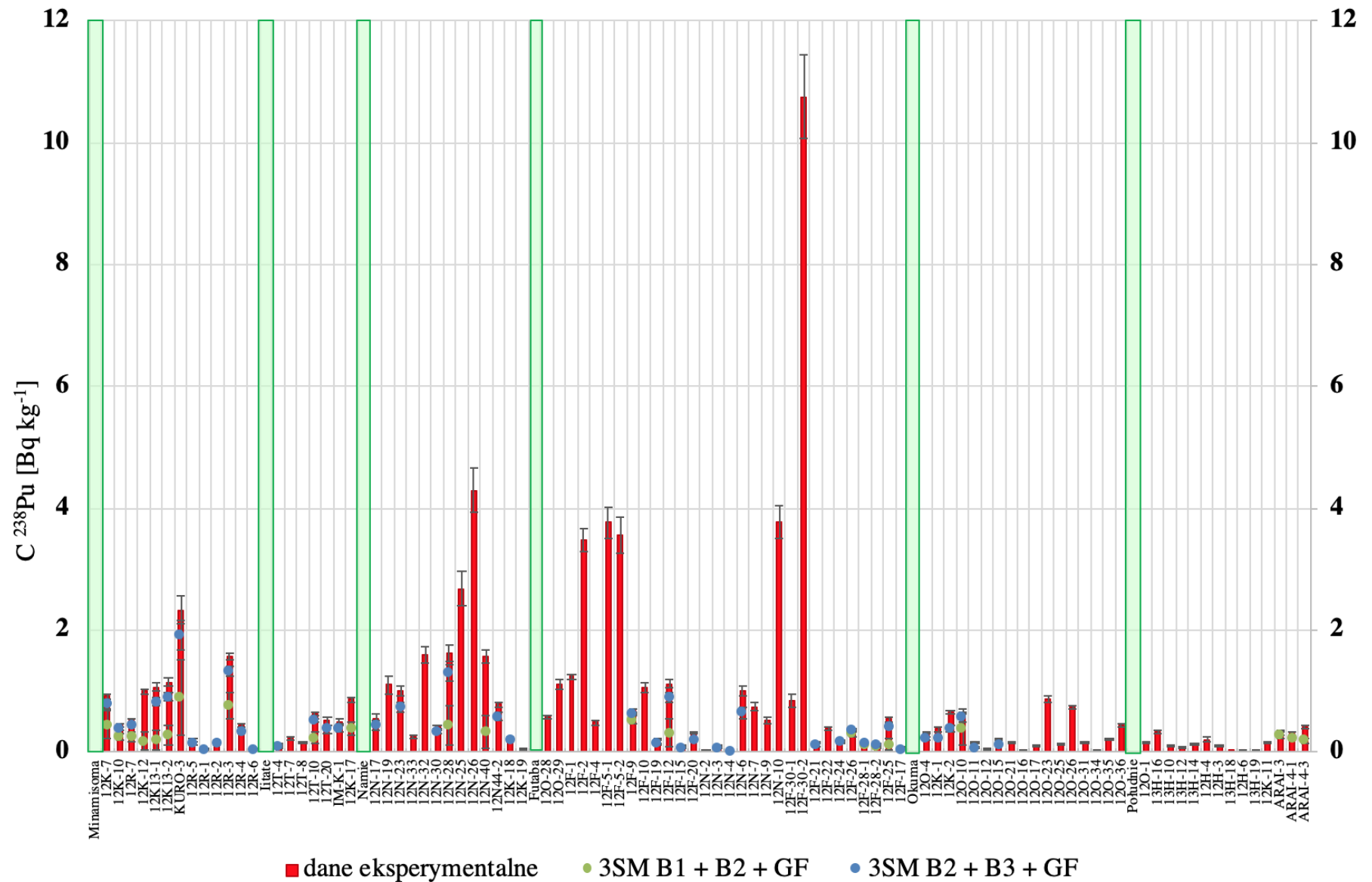
B (22)	B1 [%]	B2 [%]	GF [%]
MIN	10	18	0.16
MAX	81	87	4.1
Średnia	53	47	0.28
Mediana	52	47	0.93
C (7)	B1[%]	B3[%]	GF[%]
MIN	58	12	0.37
MAX	87	40	2.8
Średnia	82	17	0.91
Mediana	78	20	1.2
D (43)	B2[%]	B3[%]	GF[%]
MIN	42	3.3	0.02
MAX	97	56	4
Średnia	76	23	0.27
Mediana	75	24	0.86

liczby w nawiasach - liczba przypadków, dla których dany wariant 3SM dał pozytywny wynik.

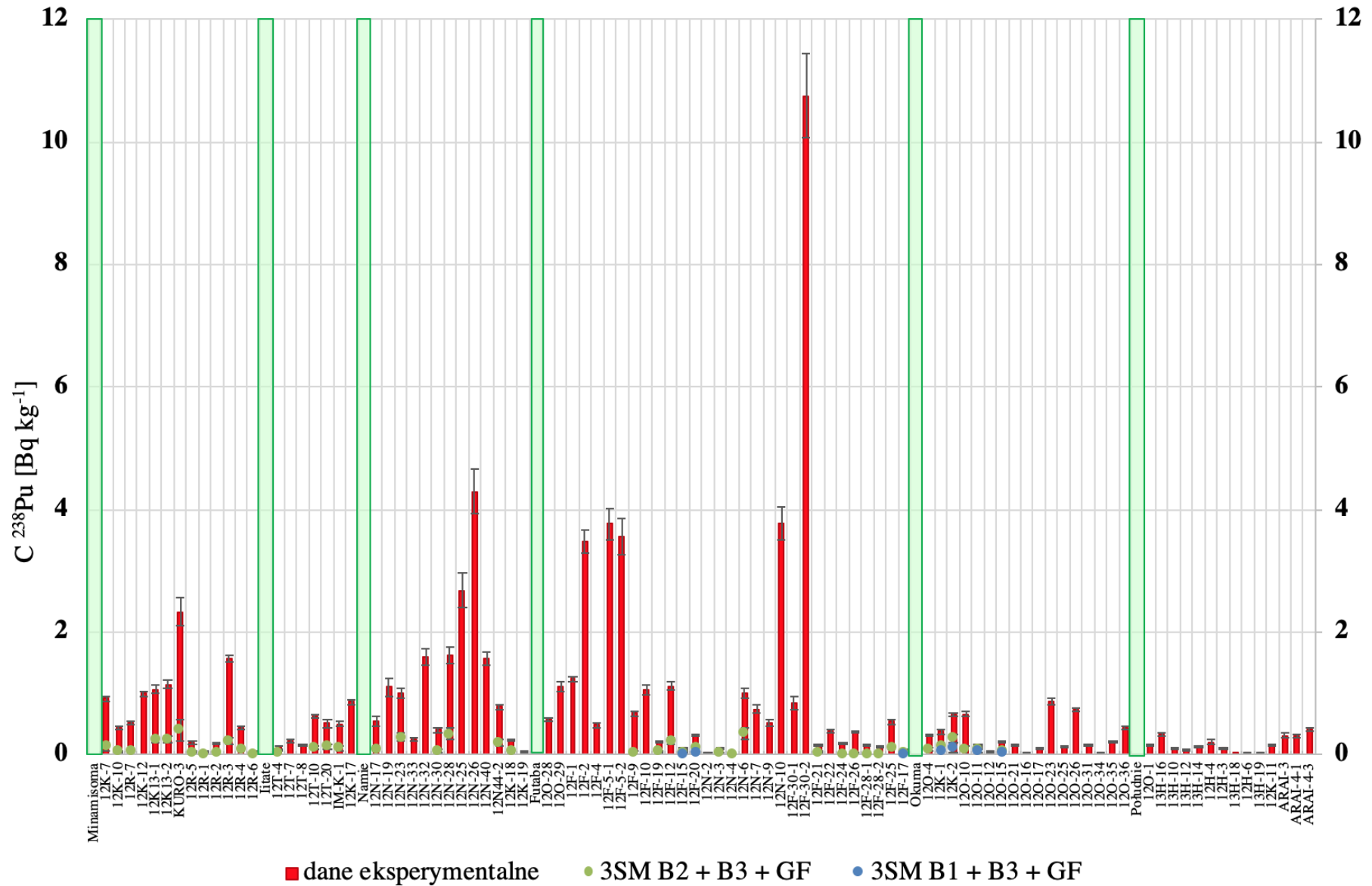


Rysunek 2.14: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 1 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 3SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2+GF oraz B1+B3+GF.

LL



Rysunek 2.15: Stężenie aktywności ²³⁸Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 2 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 3SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2+GF oraz B2+B3+GF.



Rysunek 2.16: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 3 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 3SM w dwóch konfiguracjach: B1+B3+GF oraz B2+B3+GF.

2SM

Użycie modelu 2SM zakładającego współistnienie śladów z 2 źródeł było pokłosiem wcześniejszych analiz (4SM i 3SM) i poszukiwaniem optymalnych kombinacji źródeł, które dawałyby uzasadnienie wyznaczonych stosunków aktywności wybranych aktynowców. W przypadku 2SM 3 bloki energetyczne FDNPP i GF dawały możliwość 6 kombinacji źródeł izotopowych (tab.2.10), które mogłyby być użyte w analizach. Wiedząc jednak o małym znaczącym udziale frakcji GF (co było m.in. powodem wybrania takiego rodzaju próbek) skupiono się jedynie na tych kombinacjach, które były związane z FDNPP. Zastosowany porządek indeksów został przedstawiony w tab. 2.17 i 2.18 a wartości odpowiednich wyrazów macierzy a zaczerpnięto z tab. 2.11.

Tablica 2.17: Porządek rozważanych izotopów promieniotwórczych w modelu 2SM.

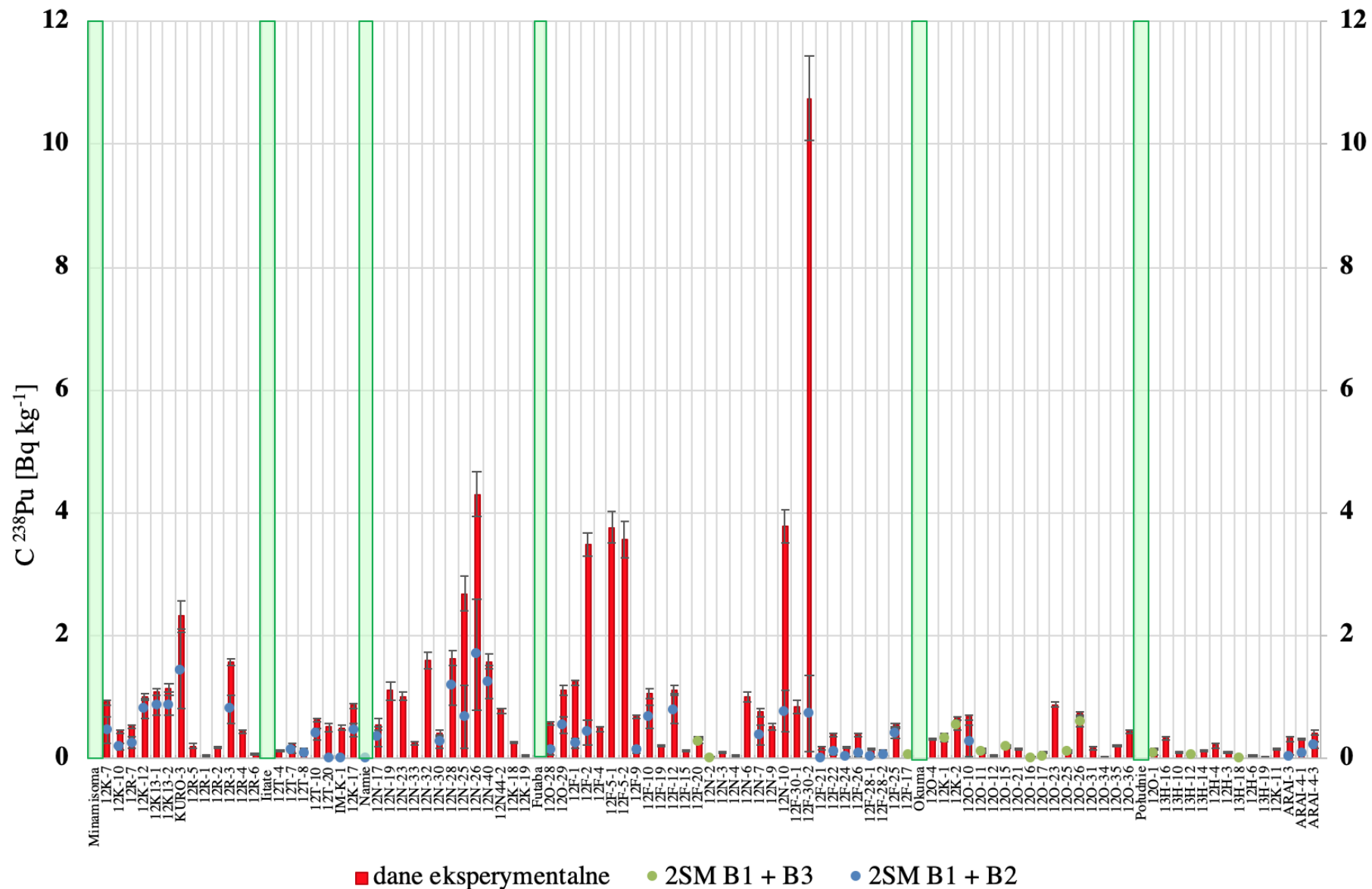
wariant 2SM/i	1	2
A, B i C	^{238}Pu	^{242}Cm

Tablica 2.18: Porządek rozważanych źródeł promieniotwórczych w modelu 2SM.

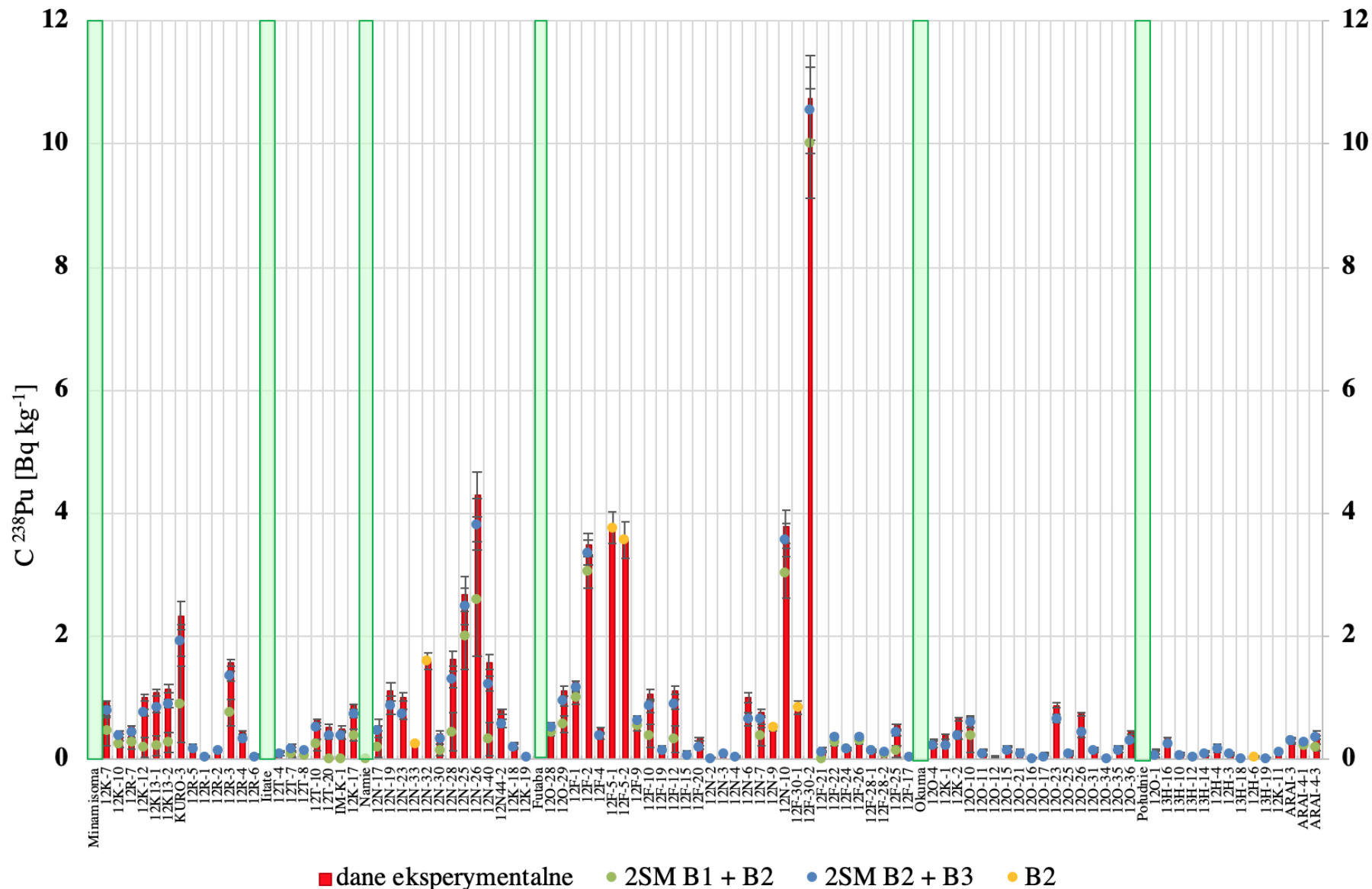
wariant 2SM/j	1	2
A	B1	B2
B	B1	B3
C	B2	B3

Sposób rozwiązania dla 2SM był taki jak poprzednio prezentowany dla wyników badań własnych. Rezultatem analizy były zdefiniowane frakcje ^{238}Pu , pochodzące z wybranych źródeł izotopowych.

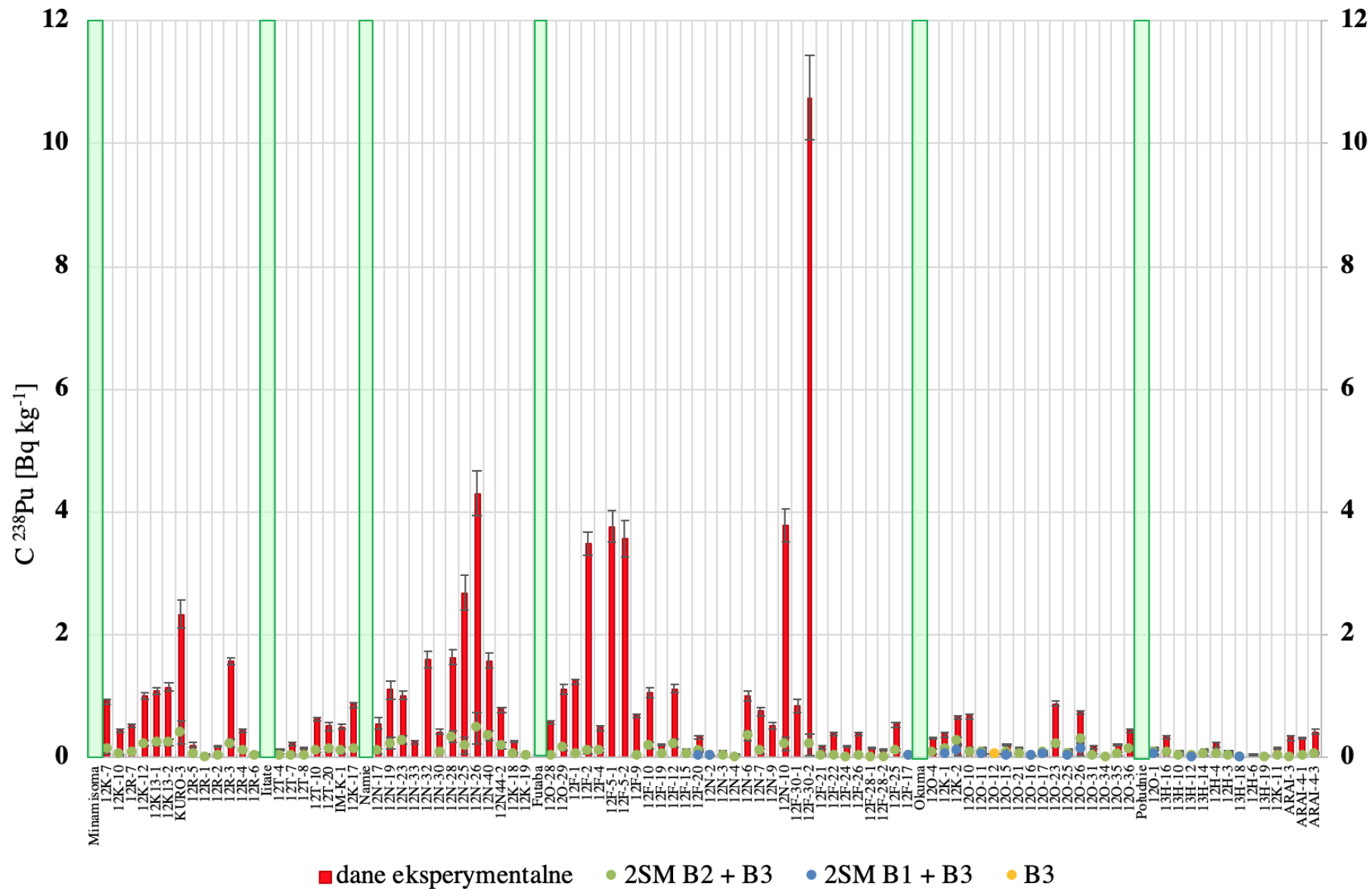
Model 2SM w wariantach przedstawionych w tab. 2.17 i 2.18, pozwolił rozwikłać problem koegzystencji śladów różnych źródeł izotopowych w 86 spośród 94 próbek (ok. 92%), przy czym pozytywne wyniki z dwóch wariantów 2SM (A i C lub B i C) otrzymano dla 53 próbek. Okazało się także, że zestawy danych, dla których nie udało się znaleźć optymalnej kombinacji źródeł izotopowych związane są z jednym źródłem tj. B2 lub B3 nigdy B1 (zgodność stosunku izotopowego wyznaczonego na podstawie pomiarów z przyjętym stosunkiem izotopowym charakteryzującym dane źródło (tab. 2.11) w granicach niepewności). Wyniki analiz zostały uporządkowane, tak jak poprzednio, ze względu na pochodzenie i przedstawione na odpowiednich wykresach. Udział frakcji ^{238}Pu z bloku nr. 1 FDNPP przedstawiono na rys. 2.17, udział frakcji ^{238}Pu z bloku nr. 2 FDNPP przedstawiono na rys. 2.18 zaś z bloku nr. 3 FDNPP na rys. 2.19.



Rysunek 2.17: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 1 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2 oraz B1+B3.



Rysunek 2.18: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 2 FDNPP i oszacowanej na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2 oraz B2+B3.



Rysunek 2.19: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 2 FDNPP i oszacowanej na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2 oraz B2+B3.

Podstawowe dane statystyczne opisujące zestaw otrzymanych wyników zostały zebrane w tab. 2.19. Frakcja ^{238}Pu stowarzyszona z blokiem nr. 3 FDNPP była najmniejszą spośród trzech rozpatrywanych.

Tablica 2.19: Zestawienie podstawowych danych statystycznych opisujących zbiory uzyskanych rozwiązań za pomocą 3 wariantów 2SM (procentowy udział frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami [%]) dla zestawów wyników próbek materiału naniesionego.

A (39)	B1[%]	B2 [%]
MIN	6.8	19
MAX	81	93
Średnia	46	54
Mediana	50	50
B (14)	B1[%]	B3[%]
MIN	31	12
MAX	88	69
Średnia	68	32
Mediana	76	24
C (86)	B2[%]	B3[%]
MIN	22	1.9
MAX	98	78
Średnia	74	26
Mediana	77	23

liczby w nawiasach - liczba przypadków, dla których dany wariant 2SM dał pozytywny wynik.

2SM a niejednorodność materiału izotopowego w ramach każdego reaktora FDNPP

Materiał do tego rozdziału powstał jako odpowiedź na potrzebę wynikającą z chęci podania bardziej precyzyjnej, szczegółowej i realnej odpowiedzi na pytania: o źródła śladów izotopów, które zostały zdeponowane w próbkach, a także o rozstrzygnięcie problemu otrzymania pozytywnych wyników działania nSM w ramach różnych wariantów kombinacji źródeł izotopowych. Zaznaczyć jednak należy, że w literaturze nie było do momentu powstania niniejszego opracowania dyskusji na ten temat w odniesieniu do śladów FDNPP a więc będzie to pierwsza próba i tylko próba/propozycja zmierzenia się z tematem konsekwencji niejednorodności składu izotopowego materiału w ramach każdego reaktora FDNPP osobno.

Wartości stosunków aktywności, które stanowią podstawę modelu nSM (elementy macierzy a , tab. 2.11) są wartościami obliczonymi na podstawie oszacowań składu izotopowego paliwa jądrowego reaktorów bloków energetycznych FDNPP (tab.1.3) i tym samym mają w sobie immanentną cechę uśrednienia. Biorąc pod uwagę specyfikę pracy reaktora należy przyjąć za pewnik niejednorodność izotopową materiału paliwowego (w ramach każdego reaktora), który został uwolniony do środowiska.

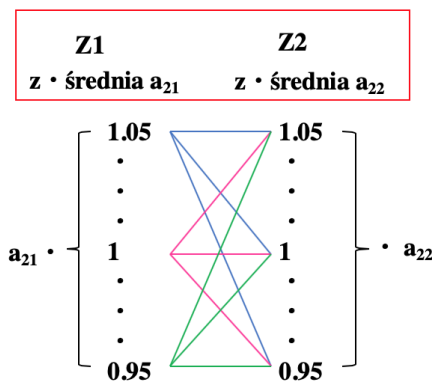
W prezentowanym podejściu założono tak jak powyżej współistnienie śladów 2 spośród 3 źródeł izotopowych tj. B1 i B2, B1 i B3 lub B2 i B3 FDNPP w próbkach materiału naniesionego (stężenia aktywności wybranych aktywności [105]). Do ich identyfikacji użyto 2SM przy zachowaniu porządku indeksów takim jak poprzednio (tab. 2.17, 2.18). Przyjęto również, że wspomniane niejednorodności obrazowane będą zakresami stosunków aktywności

definiującymi dane źródło i sięgać będą od -5% do 5% wartości przyjętych jako średnie (tab. 2.11). W każdym z zakresów wyznaczono 11 liczb z krokiem co 1% wartości średniej ($z = 1.05, 1.04, \dots, 0.96, 0.95$ wartości średniej stosunku aktywności), które następnie były traktowane jako stosunki aktywności wybranych izotopów dla jednego z 3 źródeł, tworząc tym samym 3 zbiory wartości: Z1, Z2 i Z3 odpowiadające B1, B2 i B3 (tab. 2.20).

Tablica 2.20: Zestawienie wybranych wartości stosunków aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu z przyjętych zakresów tej wielkości (od -5% do 5% wartości średniej) dla bloków nr. 1, 2 i 3 FDNPP.

z	Z1	Z2	Z3
1.05	19.91	4.49	58.80
1.04	19.72	4.45	58.24
1.03	19.53	4.41	57.68
1.02	19.34	4.36	57.12
1.01	19.16	4.32	56.56
1 (średnia)	18.97	4.28	56.00
0.99	18.78	4.24	55.44
0.98	18.59	4.19	54.88
0.97	18.40	4.15	54.32
0.96	18.21	4.11	53.76
0.95	18.02	4.06	53.20

Model 2SM został użyty dla każdej pary liczb (tab. 2.20) spośród tak powstałych zbiorów (Z1, Z2, Z3) zgodnie ze zdefiniowanym wariantem 2SM (A, B lub C tab. 2.18). Zasada tworzenia par liczb odpowiadających elementom macierzy a ze zbiorów Z_i gdzie $i=1,2,3$ została przedstawiona na rys. 2.20.



Rysunek 2.20: Schemat tworzenia par liczb będących odpowiednimi elementami macierzy a w przypadku stosowania przedziałów zmienności stosunków aktywności wybranych izotopów charakteryzujących dane źródła izotopowe do 2SM.

Z1, Z2 - zbiory wartości stosunków aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu odpowiadające dwóm źródłom, z - mnożnik wartości średniej zdefiniowanej w tab. 2.20.

Tak zdefiniowane działanie dawało 121 możliwych kombinacji współczynników macierzy a dla każdego z wariantów 2SM (A, B lub C). Sposób rozwiązania powstałych układów równań (121 dla każdego wariantu 2SM) przy ustalonych warunkach był taki jak prezentowany

w poprzednim punkcie. Wynikiem analizy były nie tylko zdefiniowane frakcje ^{238}Pu pochodzące z wybranych źródeł izotopowych (B1, B2 lub B3) ale także liczba kombinacji dająca pozytywne wyniki dla danego wariantu 2SM utożsamiana z prawdopodobieństwem (P), dla którego dany wariant 2SM był prawdziwy (liczba wyników pozytywnych do liczby wszystkich możliwych wyników). Podstawowe dane statystyczne opisujące zbiór powyżej zdefiniowanych prawdopodobieństw dla rozważanego zestawu danych zostały zestawione w tab. 2.21 natomiast poszczególne wyniki zostały przedstawione na rys. 2.21. Narzucając warunki na otrzymane wartości prawdopodobieństwa można dokonać rozstrzygnięć co do istotności danego rozwiązania 2SM przy przyjętych założeniach.

Tablica 2.21: Zestawienie podstawowych danych statystycznych opisujących zbiory uzyskanych rozwiązań za pomocą 3 wariantów 2SM (średni procentowy udział frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami [%]) dla zestawów wyników próbek materiału naniesionego oraz prawdopodobieństwo (P) wystąpienia danego wariantu kombinacji źródeł izotopowych w zadanych zakresach zmienności stosunków aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujących 3 bloki FDNPP [%].

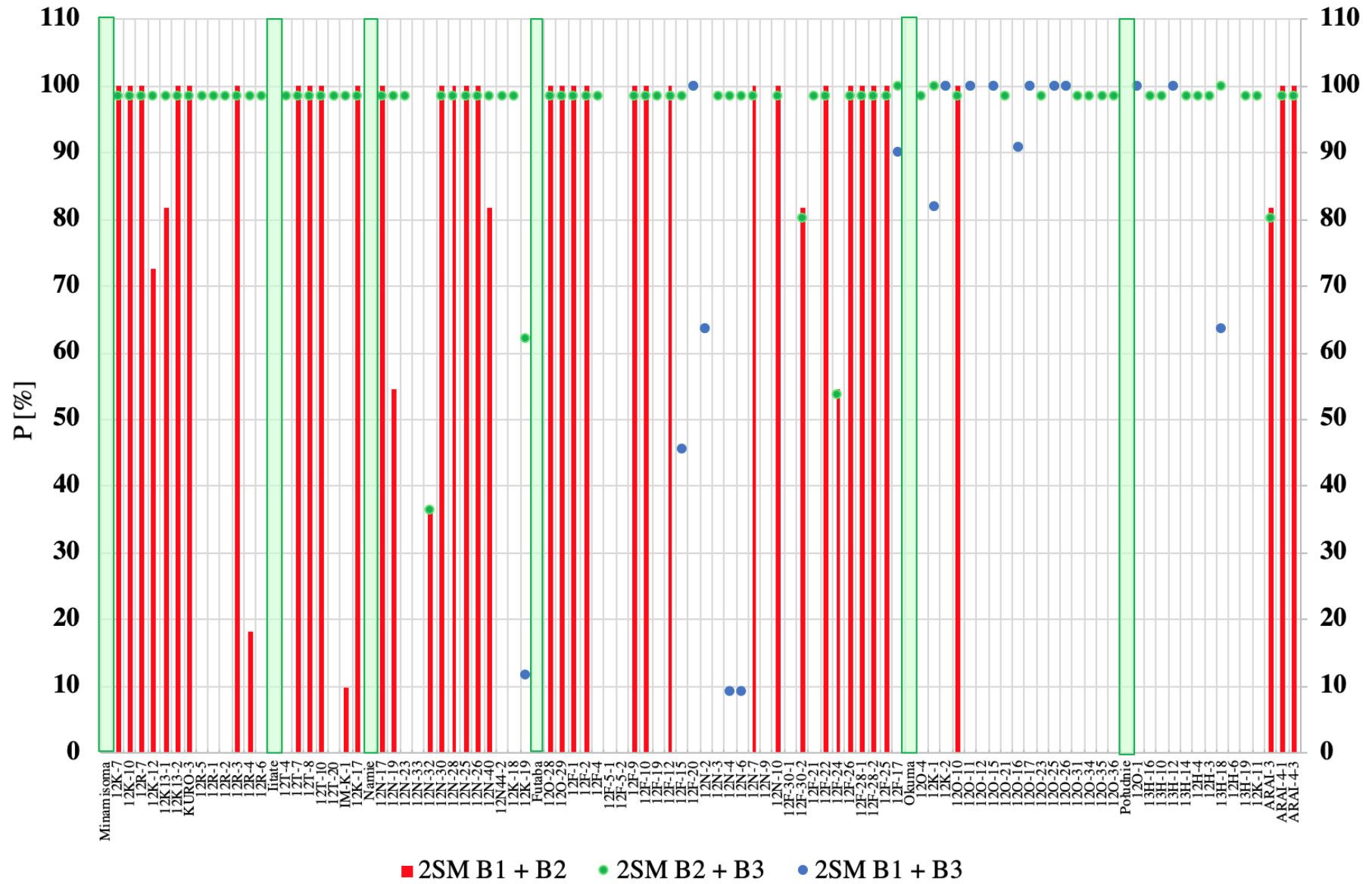
A (42)	B1 [%]	B2 [%]	P [%]
MIN	6.7	20	10
MAX	80	93	100
Średnia	47	53	90
Mediana	51	49	100
B (11)	B1 [%]	B3 [%]	P [%]
MIN	31	12	9
MAX	88	69	100
Średnia	70	30	76
Mediana	78	22	95
C (87)	B2 [%]	B3 [%]	P [%]
MIN	23	2	36
MAX	98	77	100
Średnia	74	26	96
Mediana	77	23	98

liczby w nawiasach - liczba przypadków, dla których dany wariant 2SM dał pozytywny wynik.

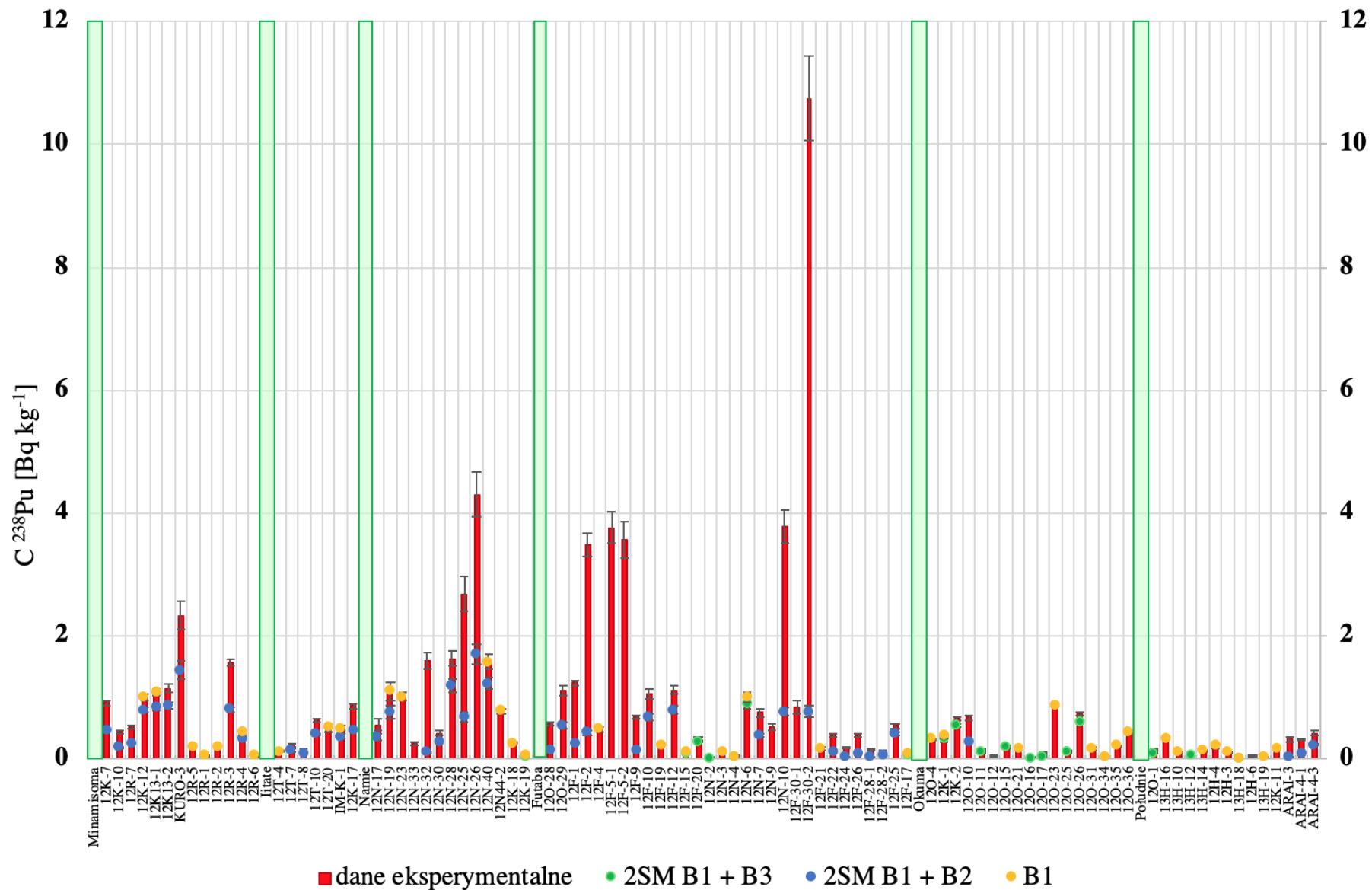
Dla pokazania jak zmienił się obraz rozwiązań 2SM przy zastosowaniu przedziałów zmienności przygotowano wykresy w podobnej konwencji jak poprzednio w przypadku 3SM i 2SM. Tym razem wartości frakcji ^{238}Pu pochodzące z rozważanych źródeł izotopowych dla każdej próbki oszacowano w następujący sposób:

$$\bar{\alpha}_j = \frac{\sum_{k=1}^{121} F_{jk}}{l} \frac{A_1}{100\%} \quad (2.21)$$

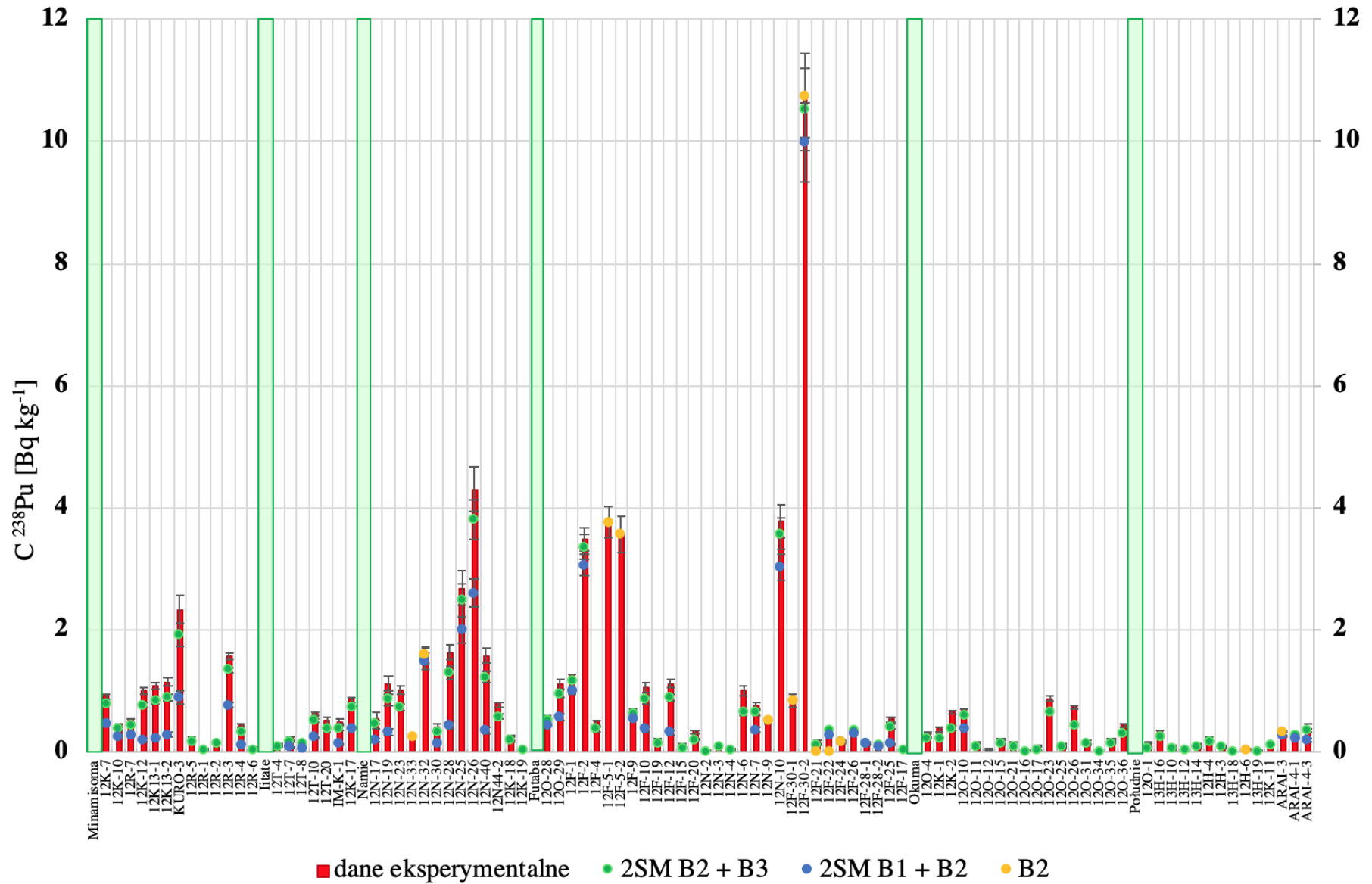
gdzie: $\bar{\alpha}_j$ - średni procentowy udział frakcji ^{238}Pu stowarzyszonej z j-tym źródłem, F_{jk} - udziały frakcji związanych z danym źródłem w całkowitej aktywności ^{238}Pu obliczone przy użyciu 2SM dla par liczb z przedziałów zmienności stosunków aktywności zadanych izotopów dla wybranego wariantu kombinacji źródeł, l - liczba rozwiązań spośród 121 dla danego wariantu kombinacji źródeł dających pozytywne wyniki.



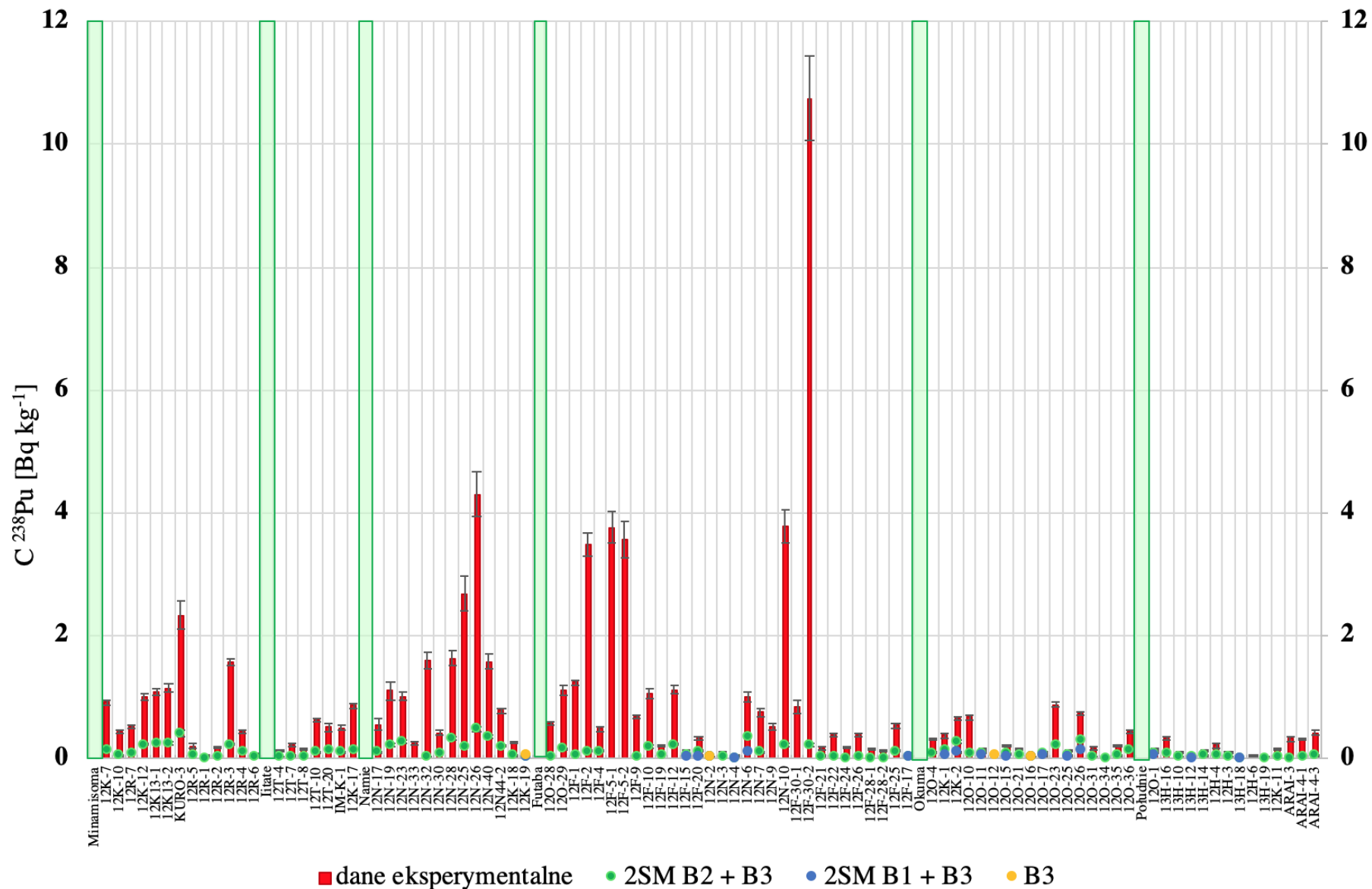
Rysunek 2.21: Prawdopodobieństwo wystąpienia danej kombinacji źródeł (B1 i B2, B1 i B3 lub B2 i B3 FDNPP) w próbkach materiału naniesionego [105].



Rysunek 2.22: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz uśrednione frakcje pochodzące z bloku nr. 1 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+ B2 oraz B1+ B3 przy założeniu, że stosunki aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujące dane źródło izotopowe zmieniają się w przyjętym zakresie.



Rysunek 2.23: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz uśrednione frakcje pochodzące z bloku nr. 2 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+ B2 oraz B2 +B3 przy założeniu, że stosunki aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujące dane źródło izotopowe zmieniają się w przyjętym zakresie.



Rysunek 2.24: Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz uśrednione frakcje pochodzące z bloku nr. 3 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+ B2 oraz B2 +B3 przy założeniu, że stosunki aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujące dane źródło izotopowe zmieniają się w przyjętym zakresie.

Dane statystyczne charakteryzujące otrzymany zbiór rozwiązań dla średnich procentowych udziałów frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami zebrano w tab. 2.21. W tym podejściu udało się rozwiązać problem współistnienia śladów 2 źródeł w 87 próbkach spośród 94. Dodatkowo sprawdzono czy wyniki eksperymentalne [105] mieszczą się w założonych zakresach stosunków aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu i czy danej próbce można przypisać jedno źródło. Wszystkie wyniki znalazły się na rys. 2.22 - 2.24. Interpretacja uzyskanych wyników, tak jak to było zaznaczone poprzednio zostanie zamieszczona w rozdz. 3.

2.3 Pomiary sztucznych izotopów promieniotwórczych w organizmach pacjentów przebywających w Japonii w 2011 r.

Jedną z konsekwencji awarii FDNPP były skażenia wewnętrzne ludności przebywającej na terenie Japonii. Skażenia te powstawały w wyniku wniknięcia zarówno drogą pokarmową jak i oddechową, uwolnionych do środowiska izotopów promieniotwórczych. Skala wielkości skażeń była zdeterminowana wieloma czynnikami, z których najważniejsze to odległość przebywania danej osoby od miejsca awarii i czas kontaktu ze skażonym medium, zaś pozostałe to m.in. czas połowicznego zaniku izotopu powodującego skażenie, jego forma chemiczna, właściwości fizyczne, etc. W niniejszym opracowaniu przedstawiono wyniki badań skażeń wewnętrznych 6 osób przebywających w Japonii w 2011 r. Badania te zostały wykonane przy użyciu jednej z bezpośrednich metod oceny skażeń wewnętrznych tj. spektrometrii całego ciała, która umożliwiła zarówno jakościową jak i ilościową analizę izotopów gamma - spektrometrycznych obecnych w organizmach badanych osób. Komentarze dotyczące wyników i ich interpretacja zostaną przedstawione w rozdz. 3.

Dane dotyczące wykonawców i miejsc wykonania poszczególnych zadań wchodzących w zakres prezentowanych badań (rozdz. 2.3) zostały zebrane w Dodatku A.

Spektrometr Całego Ciała w IFJ PAN (SCC)

Spektrometr Całego Ciała w IFJ PAN (SCC) jest kontynuacją aparatury istniejącej wcześniej w Instytucie Medycyny Pracy w Łodzi [118]. Został on zbudowany i użytkowany od 1963 r. a następnie w 2008 r. przekazany do Krakowa gdzie poddano go gruntownej modernizacji. Końcowa konstrukcja została umieszczona w pomieszczeniu zlokalizowanym w przyziemiu w budynku IFJ PAN. W pomieszczeniu tym wzmocniono fundamenty a podłogę dodatkowo wyścielono folią membranową (antyradonową) mającą za zadanie obniżenie tła naturalnego promieniowania gamma od produktów rozpadu radonu. Takie działanie zapewniło utrzymanie średniego stężenia aktywności radonu w/w pomieszczeniu na poziomie 40 Bqm^{-3} [119].

Jednym z głównych elementów SCC jest jego obudowa. Jest to prostopadłościan zbudowany z 18 t XIX - wiecznej stali, wolnej od domieszek ^{60}Co , powszechnie występujących w wyrobach metalurgicznych produkowanych obecnie. Wymiary wewnętrzne komory to 1.1 m x 1.2 m x 1.9 m (szer. x wys. x dług.) zaś grubość ścian obudowy to 17 cm. Komora wewnątrz została dodatkowo wyłożona płaszczyznami miedzi o grubości 3 mm. Dostęp do komory umożliwiają ruchome drzwi o masie 2t.

System detekcji promieniowania gamma stanowią 2 koaksjalne detektory HPGe (1. typu PopTop z okienkiem z Be z osłoną z PE i 2. typu p z okienkiem z Al, oba o 30 % wydajności względnej, ORTEC) oraz 5 calowy NaI(Tl) licznik scyntylicyjny (pozostałość pierwotnego

układu pomiarowego). Detektory germanowe z 7 l dewarami zamocowane są na stałe do górnej powierzchni komory, natomiast licznik scyntylacyjny jest ruchomy i może być wsuwany lub wysuwany z komory spektrometru. Umieszczenie i pozycja detektorów nie są przypadkowe. Pomiar pacjentów (przyp. określenie osoby poddawanej pomiarowi) odbywa się w pozycji leżącej na wyprofilowanym, wysuwanym łóżku. Pierwszy z detektorów germanowych (det. X) skierowany jest na górną część ciała (szyję), drugi (det. Y) na dolną część ciała (brzuch) podobnie jak licznik scyntylacyjny (det. Z). Układ spektrometryczny został uzupełniony o elektronikę (zasilacz, wzmacniacz, analizator wielokanałowy - Multiport II) firmy CANBERRA. Akwizycja danych odbywa się przy użyciu oprogramowania Genie 2000.

W celu zapewnienia komfortu pacjentom, komora pomiarowa dodatkowo została wyposażona w nawiew wymuszający przepływ powietrza, kamerę, system interkom (do porozumiewania się z pacjentem), telewizor oraz oświetlenie LED. Przekrój SCC i jego wnętrze zostały pokazane na rys. 2.26 - 2.27.

SCC został uruchomiony w lutym 2011 r.



Rysunek 2.25: SCC w IFJ PAN

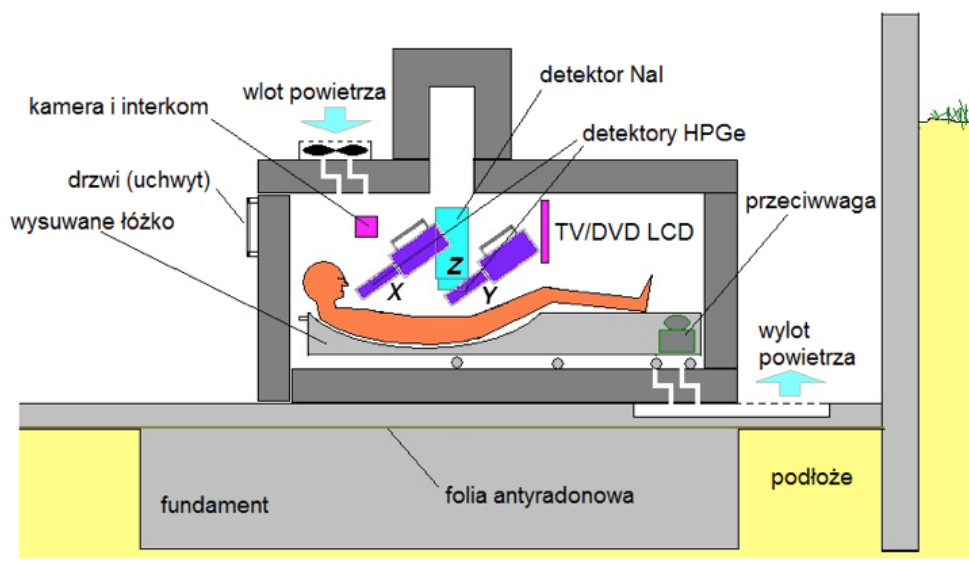


Rysunek 2.26: Wnętrze SCC w IFJ PAN.

Osoby poddane pomiarom w SCC

Pomiarom związanym z awarią FDNPP w SCC poddano 2 grupy ludzi. Do pierwszej z nich należały osoby zgłaszające się po powrocie z Japonii w marcu/kwietniu 2011 r. lub mieszkające tam na stałe i odwiedzające Kraków (n=6), do drugiej zaś grupy (grupy odniesienia) zaliczono osoby, które nie wyjeżdżały w tym czasie z Polski (n=6).

Pierwszy pomiar odbył się 24 marca 2011 r. a pacjentem (P1) była modelka przebywająca w Tōkiō pomiędzy 10 a 16 marca 2011 r., która miała wziąć udział w pokazie mody. Kolejne trzy osoby to pracownicy instytutów naukowych: inżynier elektronik (P6), fizyk (P7) i chemik (P8) pracujący w ramach kontraktów lub staży w Tsukuba lub Tōkai. Ostatni 2 pacjenci pierwszej grupy zostali poddani pomiarom w marcu i kwietniu 2012 r. (rok po awarii FDNPP) i byli to pracownicy naukowci mieszkający na stałe w Japonii i pracujący w Chiba: geochemik (P34) i lekarz (P35). Obaj pacjenci przebywali w prefekturze Fukushima (miasto Fukushima lub obszar pomiędzy miastem a FDNPP) przy czym pacjent P34 kilka dni na tydzień przed pomiarem zaś pacjent P35 spędził tam łącznie 62 dni w ciągu roku przed pomiarem, z czego



Rysunek 2.27: Przekrój SCC w IFJ PAN [119]

kilka w obszarze oddalonym o 25 km od FDNPP. Osoby należące do drugiej grupy (grupy odniesienia) były pracownikami, doktorantami lub studentami wykonującymi prace badawcze w IFJ PAN (P2 - P5, P36) oraz jeden wolontariusz spoza IFJ PAN (kierowca). Wszystkie te osoby mieszkały na terenie Krakowa.

Podstawowe dane dotyczące pacjentów obu grup istotne z punktu widzenia opracowania wyników zostały zebrane w tab. 2.22.

Tablica 2.22: Zestawienie podstawowych danych osób poddanych pomiarom w SCC.

Grupa	Kod	Płeć	Masa ciała [kg]	Wzrost [m]	BMI	Data pomiaru	Pobyt w Japonii		Miejsce pobytu w Japonii
							Przyjazd	Wyjazd	
1	P1	K	55	180	17.0	24.03.2011	10.03.2011	16.03.2011	Tōkiō
	P6	M	68	164	25.3	07.04.2011	22.02.2011	21.03.2011	Tsukuba
	P7	M	70	177	22.3	19.04.2011	02.03.2011	14.03.2011	Tōkai
	P8	K	56	156	23.0	26.04.2011	01.12.2010	20.03.2011	Tsukuba
	P34	M	82	177	26.2	15.03.2012	mieszkaniec Japonii		Chiba
	P35	M	54	162	20.6	02.04.2012	mieszkaniec Japonii		Chiba
2	P2	K	63	174	20.8	24.03.2012	Nie dotyczy		
	P3	K	83	170	28.7	24.04.2012			
	P4	M	65	170	22.5	25.03.2012			
	P5	M	60	178	18.9	28.03.2011			
	P32	M	85	188	24.0	07.03.2012			
	P36	K	60	160	23.4	03.04.2012			

Kod - kod nadany osobie poddanej pomiarom, K - kobieta, M - mężczyzna, BMI - body mass index, m - masa ciała, h - wzrost

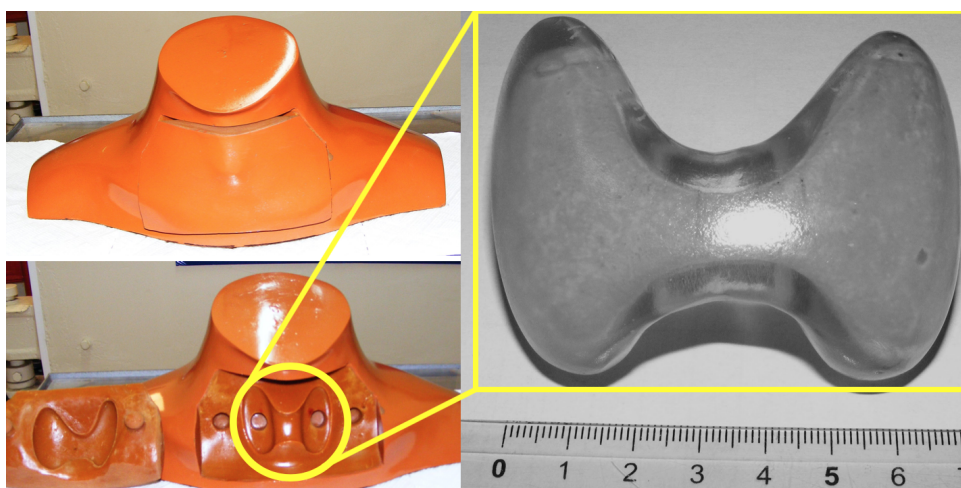
$$BMI = \frac{m}{h^2} \left[\frac{kg}{m^2} \right] \quad (2.22)$$

2.3.1 Kalibracje SCC w geometrii tarczycy i całego ciała

Z uwagi na fakt, że SCC został uruchomiony na kilkanaście dni przed awarią FDNPP to w chwili pomiarów pierwszych pacjentów nie był on wyposażony w pełen zestaw kalibracji dedykowanych konkretnym geometriom. Kalibracje SCC, użyte w poniższym opracowaniu zostały wykonane *post factum* niemniej jednak dla zachowania ciągu logicznego i przejrzystości procedury pomiarowej oraz wykonanych analiz, kolejne kroki zostaną przedstawione bez zachowania chronologii.

Kalibracja SCC w geometrii tarczycy

Kalibrację SCC w geometrii tarczycy wykonano przy użyciu fantomu wypożyczonego z Laboratorium Pomiarów Jodu Promieniotwórczego w Tarczycy Centralnego Laboratorium Ochrony Radiologicznej (CLOR, G. Krajewska). Fantom typu RS-232 firmy RSD (Radiology Support Devices Inc. USA) składał się z: wkładki tarczyczo-podobnej, pokrywy tarczycy, odcinka szyjnego kręgosłupa, obojczyka i fragmentu mostka (wg. standardu „The Lawrence Livermore Realistic Phantom”) [120]. W celu symulacji gęstości tkanek ciała ludzkiego wykonany on został z poliuretanu z dodatkiem CaCO_3 . Fantom został zaprezentowany na rys. 2.28.



Rysunek 2.28: Fantom RS-232 użyty do kalibracji SCC wypożyczony z CLOR.

Z uwagi na fakt, że tarczyca jest organem krytycznym dla jodu (rozdz. 1.2.1) kalibrację w tej geometrii wykonano dla izotopu ^{131}I . Wkładkę tarczyczo-podobną wypełniono roztworem ^{131}I (roztwór certyfikowany, Czech Metrology Institute) o aktywności 33.1 ± 2.1 kBq na dzień pomiaru i umieszczono w fantomie. Fantom usytuowano w odpowiednim miejscu w SCC (zgodnie z ułożeniem pacjenta w trakcie pomiaru rys.2.26) i przeprowadzono pomiary przy użyciu dwóch detektorów: X i Y. Wydajność spektrometru dla energii 364.5 keV i geometrii tarczycy została obliczona na podstawie równania 1.14, niepewności zaś oszacowano metodą różniczki zupełnej. Wyniki zestawiono w tab. 2.23. Otrzymana wydajność det. Y jest mniejsza od det. X z uwagi na większą odległość od poddanego pomiarom fantomu (rys.2.27) oraz w mniejszym stopniu z uwagi na materiał okienka detektora (det. X okienko Be, det. Y okienko Al).

Tablica 2.23: Zestawienie wydajności detektora X i Y SCC dla linii widmowej ^{131}I o energii 364 keV dla geometrii tarczycy.

Detektor	ϵ_{ff}
X	0.00379 ± 0.00044
Y	0.0001976 ± 0.0000022

Niepewności związane z geometrią pomiarową tarczycy

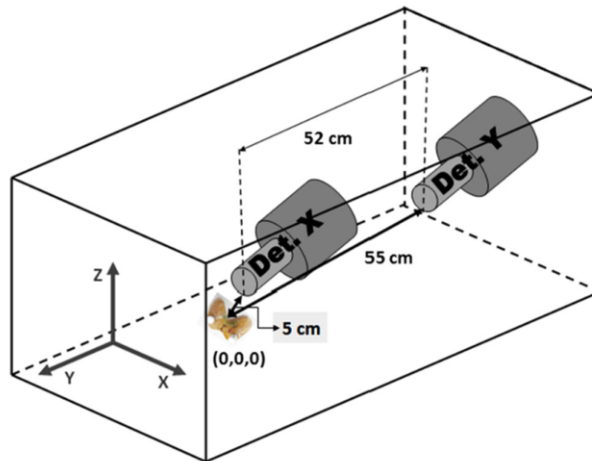
Jednym z głównych aspektów pomiarów przy użyciu spektrometrii całego ciała są niedoszacowania niepewności związanych z osobniczymi cechami danego organu oraz jego położeniem w ciele człowieka. Jest to problem, którego poszukiwanie rozwiązania znalazło swoje odbicie w literaturze [121], [122]. Skupiając się na tarczycy, jest to jeden z większych i nieparzystych gruczołów. Jest on zmienny i często asymetryczny. Jego masa u noworodków wynosi od 2 g do 3 g zaś u osób dorosłych od 17 g do 60 g. Tarczyca zbudowana jest z dwóch płatów bocznych połączonych wąską cieśnią. Czasem występuje również trzeci płat piramidowy [123]. Pomiar ultrasonograficzny (wykonane na zdrowej grupie osób) pokazały, że wielkość tarczycy u kobiet jest mniejsza niż u mężczyzn i dochodzi ona odpowiednio do 18 cm^3 oraz do 25 cm^3 [124]. Tarczyca jest położona w przedniej części szyi w dolnej jej połowie [123].

Przed wizytą pacjentów w IFJ PAN nie były wykonywane pomiary ultrasonograficzne a więc nie było też informacji o wielkości tarczycy. W związku z tym wszystkie wyniki podawane są dla geometrii wystandaryzowanego fantomu (informacje w rozdziale powyżej) bez uwzględnienia niepewności związanych z wielkością tego organu.

W celu weryfikacji wielkości różnic w szacowaniu aktywności zdeponowanej w tarczycy wraz ze zmianą jej położenia (wynikającej zarówno z osobniczego umiejscowienia tarczycy jak i niedokładności w pozycjonowaniu pacjenta) przeprowadzono eksperyment [125]. W tym celu wykonano fantom tarczycy z żywicy epoksydowej (będącej odlewem wkładki tarczycy - podobnej używanej wcześniej do kalibracji SCC) z wnęką o objętości 16 cm^3 . Fantom został wypełniony roztworem KI (50 mg dm^{-3}) o aktywności 6 kBq (na pierwszy dzień eksperymentu) a następnie umieszczony na specjalnie skonstruowanym statywie w tej samej pozycji w jakiej wcześniej dokonywano pomiarów kalibracyjnych i która jest właściwa dla pomiarów w SCC. Fantom znajdował się w odległości 5 cm od det. X i 55 cm od det. Y (rys. 2.29).

Środek fantomu (środek cieśni łączącej płaty tarczycy) wyznaczał punkt o współrzędnych (0,0,0). Wykorzystany statyw miał możliwość zmiany położenia fantomu tarczycy (tj. przesuwania go) wzdłuż osi x, y i z. W eksperymencie wykonano pomiary gamma - spektrometryczne dla położenia tarczycy zmieniającego się w zakresie od -5 cm do 5 cm dla osi x, od -2 cm do 2 cm dla osi y i z, z krokiem co 1 cm. Średni czas pomiaru wynosił 10 minut z czasem martwym nie przekraczającym 0.2 % dla obu detektorów.

Łącznie wykonano 275 pomiarów. Niepewności związane ze statystyką liczby zliczeń dla linii widmowej 364.5 keV były nie większe niż 2 % i 10 % odpowiednio dla detektorów X i Y.



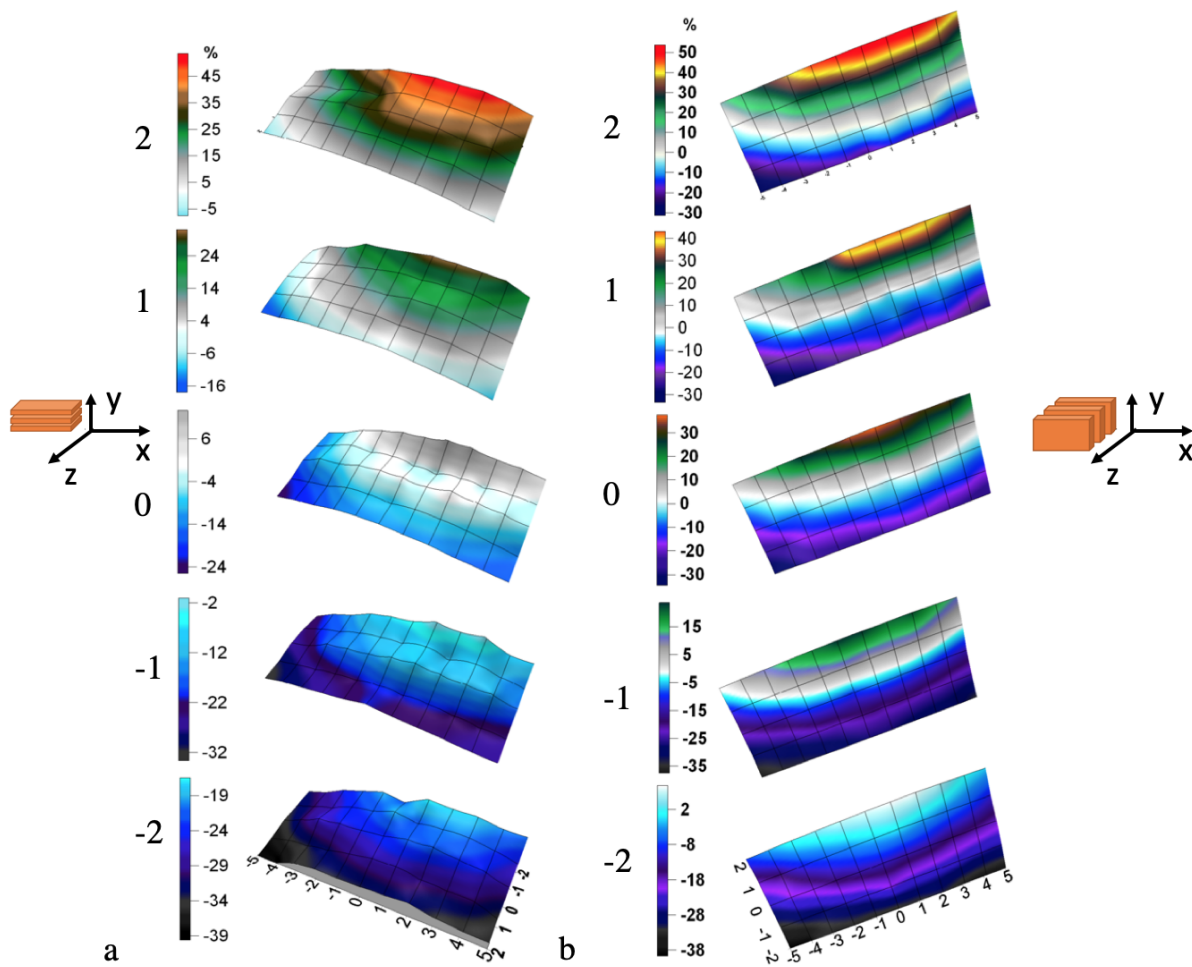
Rysunek 2.29: Schemat SCC wraz z fantemem tarczycy w położeniu (0,0,0) [125].

Wynikiem analiz były względne różnice w wydajności rejestracji kwantów o energii 364.5 keV związane z przesunięciami fantomu tarczycy, które zostały obliczone na podstawie zależności:

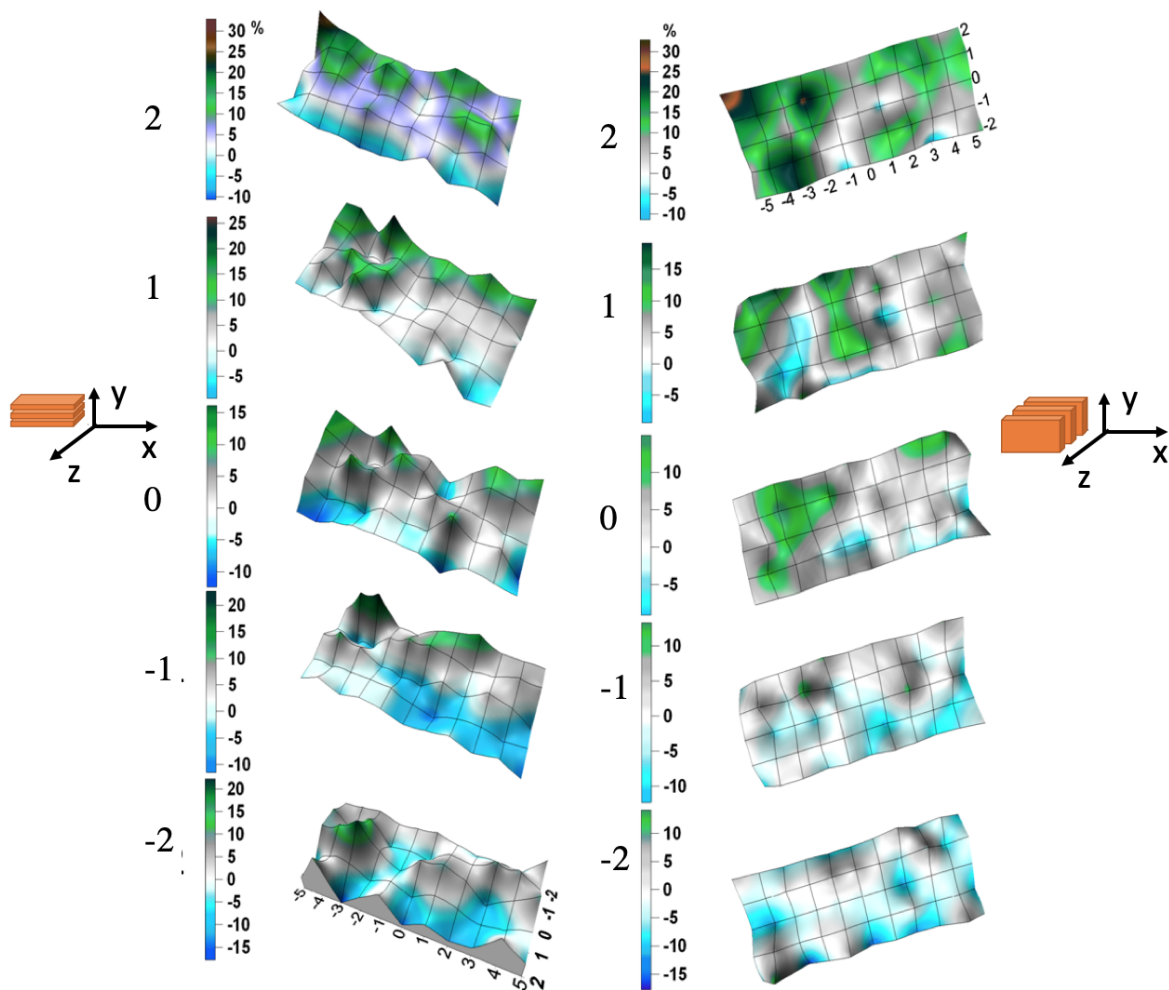
$$\delta = \frac{\epsilon_{ff(0,0,0)} - \epsilon_{ff(x_i, y_i, z_i)}}{\epsilon_{ff(0,0,0)}} 100\% \quad (2.23)$$

gdzie: $\epsilon_{ff(0,0,0)}$ - wydajność rejestracji dla danej energii w geometrii tarczycy w punkcie (0,0,0), $\epsilon_{ff(x_i, y_i, z_i)}$ - wydajność rejestracji dla danej energii w geometrii tarczycy w punkcie (x_i, y_i, z_i) , gdzie: $i=1,2,3,\dots,274$ zaś ϵ było wyznaczane na podstawie równania 1.14.

Otrzymane wyniki przedstawiono w postaci płaszczyzn: (x,y) oraz (x,z) dla obu detektorów (rys. 2.30, 2.31). Wszystkie wyniki zostały podane na czas pierwszego pomiaru. Pokazały one, że zmiana położenia fantomu implikuje zmianę wydajności dla geometrii tarczycy nawet o 50 % dla det. X i 30 % dla det. Y w założonych zakresach osi x, y i z.



Rysunek 2.30: Rozkład względnej różnicy w wydajności rejestracji kwantów o energii 364.5 keV a) w płaszczyźnie (x,z) b) w płaszczyźnie (x,y) dla detektora X w zakresach (-5,5) cm dla osi x, (-2,2) cm dla osi y oraz z [125].



Rysunek 2.31: Rozkład względnej różnicy w wydajności rejestracji kwantów o energii 364.5 keV a) w płaszczyźnie (x,z) b) w płaszczyźnie (x,y) dla detektora Y w zakresach (-5,5) cm dla osi x, (-2,2) cm dla osi y oraz z [125].

Fantom POLA

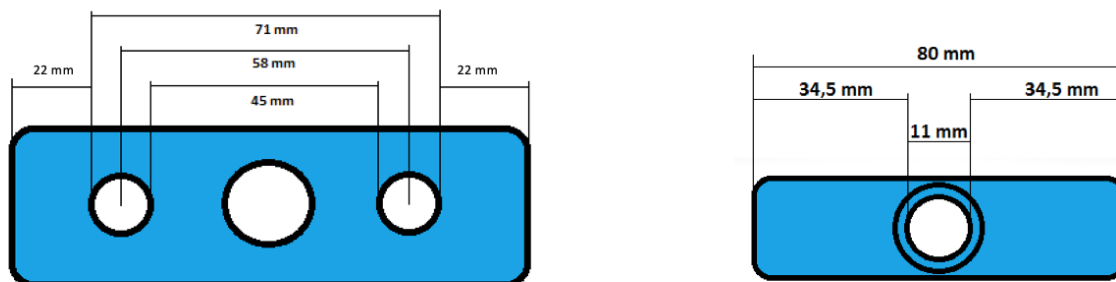
W celu wykonania oznaczeń izotopów w organizmach ludzkich, które nie są selektywnie akumulowane w określonych organach ale przyjmuje się, że ich rozmieszczenie jest równomierne lub nie ma wiedzy na temat ich umiejscowienia, przygotowano geometrię pomiarową całego ciała. Kalibracja SCC w tej geometrii dla zakresu energetycznego od 59.5 keV do 1461 keV została przeprowadzona przy wykorzystaniu zbudowanego w tym celu fantomu antropometrycznego o zmiennej geometrii POLA [126].

Fantom POLA został zbudowany z dwóch rodzajów prostopadłościennych, polietylenowych elementów różniących się wymiarami, które zostały zestawione w tab. 2.24. W każdym z elementów zostały przygotowane kanały (2 lub 1 odpowiednio w dużym i małym elemencie) do wprowadzania źródeł promieniotwórczych. Kanały (rura montażowa PCV) miały średnicę wewnętrzną 11 mm, a ich rozmieszczenie w poszczególnych elementach zostało przedstawione na rys.2.32. Kanały te biegły wzdłuż każdego z elementów fantomu i z jednej strony (kończącej się wewnątrz elementu fantomu) zostały zamknięte i uszczelnione, z drugiej zaś (kończącej się wraz z powierzchnią elementu fantomu) pozostały otwarte umożliwiając tym samym wprowa-

dzanie źródeł izotopowych.

Tablica 2.24: Wymiary elementów konstrukcyjnych fantomu POLA [126].

Rodzaj elementu konstrukcyjnego	Długość [mm]	Szerokość [mm]	Grubość [mm]	Objętość [cm ³]
duży (D)	213	115	42	850
mały (M)	165	80	23	250



Rysunek 2.32: Schemat rozmieszczenia kanałów do wprowadzania źródeł promieniotwórczych w elementach konstrukcyjnych (dużych i małych) fantomu POLA [126].

Każdy z elementów fantomu został wypełniony roztworem wodnym żelatyny (żelatyna spożywcza typu A, Brodnickie Zakłady Żelatyny Sp. z o.o.) i benzoesu sodu (używanego jako konserwantu). Zarówno wybór konserwantu jak i kompozycji użytego roztworu dokonano na podstawie przeprowadzonych kilkumiesięcznych testów, w oparciu o końcowe właściwości fizyczne (tj. sprężystość, stan fizyczny, etc.) próbek stężącej żelatyny. Ostatecznie elementy fantomu wypełniono roztworem, w którym stosunek mas żelatyny, benzoesu sodu i wody wynosił 3:1:23 [126].

W ten sposób łącznie przygotowano 137 sztuk większych elementów oraz 117 sztuk mniejszych elementów konstrukcyjnych fantomu o całkowitych masach odpowiednio ok. 133 kg i 33 kg, przy czym średnia masa większego elementu wynosiła 0.97 kg (zakres 0.91 kg - 1.01 kg) zaś mniejszego 0.28 kg (zakres 0.27 kg - 0.29 kg). Każdemu elementowi został przypisany kod umożliwiający ich łatwą identyfikację niezbędną przy szacowaniu masy fantomu. Liczba elementów została tak dobrana by móc utworzyć jak najwięcej geometrii pomiarowych przy użyciu fantomu POLA, odwzorowując sylwetki pacjentów do granicznej masy 166 kg [126].

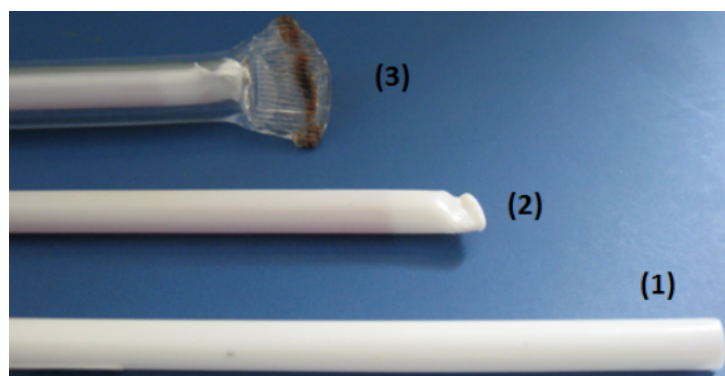
Kolejną ważną składową fantomu POLA były źródła promieniotwórcze, które umieszczano w kanałach wewnątrz elementów konstrukcyjnych. Przygotowano je w oparciu o rozwór izotopów gamma - promieniotwórczych, w skład których wchodziły: ²⁴¹Am, ¹³³Ba, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn, ⁴⁰K. Stężenia aktywności wraz z podstawowymi danymi tych izotopów zostały podane w tab. 2.25. Właściwy roztwór został przygotowany w oparciu o certyfikowane roztwory izotopowe dla pierwszych 4 wymienionych izotopów (Czech Metrology Institute). W przypadku ⁴⁰K wykorzystano fakt, że abundancja tego izotopu na Ziemi jest dobrze znana a wartość referencyjna rekomendowana przez IUPAC wynosi 0.000117 ± 0.000001 [127]. Stąd też zdecydowano o użyciu związku chemicznego potasu. O wyborze KI zadecydowała wysoka rozpuszczalność soli (144 g na 100 g wody w temp. 20 °C [128]).

Tablica 2.25: Stężenia aktywności i wybrane dane dotyczące izotopów promieniotwórczych (w tym energie emitowanych kwantów gamma) w roztworze wypełniającym źródła promieniotwórcze fantomu POLA [126].

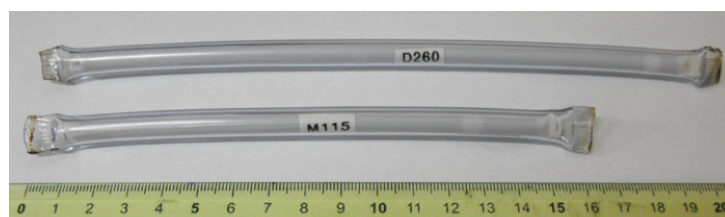
Izotop	C [Bq g ⁻¹] ¹	T _{1/2}	E [keV]	I [%]
²⁴¹ Am	5.143 ± 0.071	432.6 (6) y	26.3446 (2), 33.196 (1), 59.5409 (1)	2.27 (12), 0.126 (3), 35.9 (4)
¹³³ Ba	5.145 ± 0.080	10.551 (11) y	80.9979 (11), 276.3989 (12), 302.8508 (5), 356.0129 (7), 383.8485 (12)	32.9 (3), 7.16 (5), 18.34 (13), 62.05 (19), 8.94 (6)
¹³⁷ Cs	5.076 ± 0.080	30.08 (9) y	661.657 (3)*	85.1 (2)
⁵⁴ Mn	12.31 ± 0.22	312.20 (20) d	834.848 (3)	99.976 (1)
⁴⁰ K	3.90 ± 0.50	1.248E+9 (3) y	1460.820 (5)	10.66 (13)

T_{1/2} - czas połowicznego rozpadu, E-energia emitowanego promieniowania gamma, I-prawdopodobieństwo emisji, liczby w nawiasach oznaczają niepewność, ¹ - na dzień 22.10.2012, ² - ^{137m}Ba

Konstrukcja źródeł użytych w fantomie POLA została przedstawiona na rys. 2.33. Składały się one z dwóch rurek. Do pierwszej z nich (rurka PVC) aplikowany był przygotowany roztwór izotopów promieniotwórczych, zaś druga rurka (rurka igielitowa) stanowiła zabezpieczenie w przypadku nieszczelności pierwszej. Obie rurki były z obu stron zgrzewane (rys. 2.33).



Rysunek 2.33: Budowa źródła promieniotwórczego fantomu POLA 1. pustą rurką PVC 2. rurką PVC z zaaplikowanym roztworem izotopów promieniotwórczych 3. źródło promieniotwórcze fantomu POLA [126].



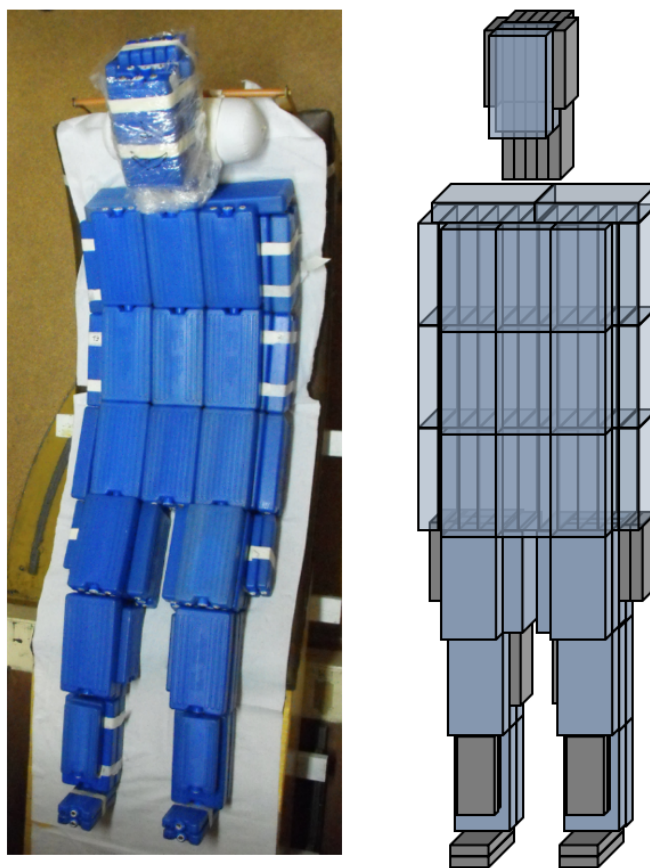
Rysunek 2.34: Źródła promieniotwórcze fantomu POLA [126].

Przygotowano 2 rodzaje źródeł różniące się długością, do małych i większych elementów konstrukcyjnych tego fantomu (rys. 2.34). Łącznie powstało 280 sztuk większych źródeł i 120 mniejszych o całkowitych aktywnościach odpowiednio 40184.7 ± 8.2 Bq oraz 11967.6

± 5.5 Bq (na dzień 22.10.2012) [126]. Każde źródło zostało opatrzone kodem (podobnie jak elementy konstrukcyjne fantomu) w celu łatwej identyfikacji aktywności znajdujących się w nim izotopów. Wszystkie dane dotyczące mas elementów konstrukcyjnych, aktywności poszczególnych izotopów w całym zestawie źródeł zostały zamieszczone w pracy magisterskiej M. Grochowskiej [126].

Kalibracja SCC w geometrii całego ciała

Kalibracja SCC w geometrii całego ciała w zakresie energetycznym od 59.5 keV do 1460.8 keV była procedurą kilkustopniową. W pierwszym kroku stworzono bazę sylwetek, opierając się na danych antropometrycznych dla populacji polskiej [129] oraz sylwetkach wybranych pacjentów. Następnie odwzorowywano zdefiniowane sylwetki przy użyciu fantomu POLA z rozdzielczością, którą umożliwiały elementy konstrukcyjne fantomu. Przykład ułożenia fantomu został przedstawiony na rys. 2.35.



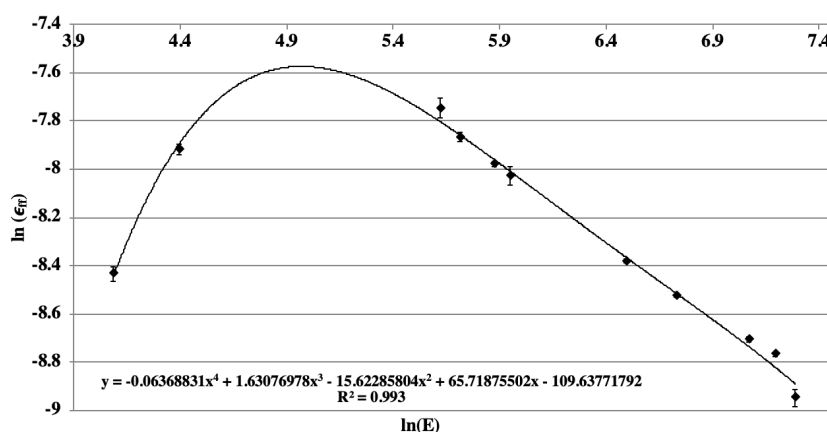
Rysunek 2.35: Fantom POLA ułożony na łóżku SCC dla sylwetki POLA PACJENT 55 (widok z góry) oraz schemat ułożenia większych (kolor stalowy) i mniejszych elementów (kolor szary) dla wskazanego wariantu fantomu [126].

Zestawienie podstawowych danych dotyczących wykorzystanych wariantów fantomu POLA do kalibracji SCC znajduje się w tab. 2.26. Przyjęto, że zmiennymi na podstawie, których wybierać się będzie efektywność rejestracji kwantów gamma dla danej geometrii pomiarowej będą masa i/lub BMI. Masa fantomów mieściła się w zakresie od 46 kg do 114 kg zaś BMI od 18.43 kg m^{-2} do 33.21 kg m^{-2} .

Tablica 2.26: Zestawienie wybranych danych dotyczących użytych do kalibracji SCC wariantów fantomu POLA (geometrii pomiarowych).

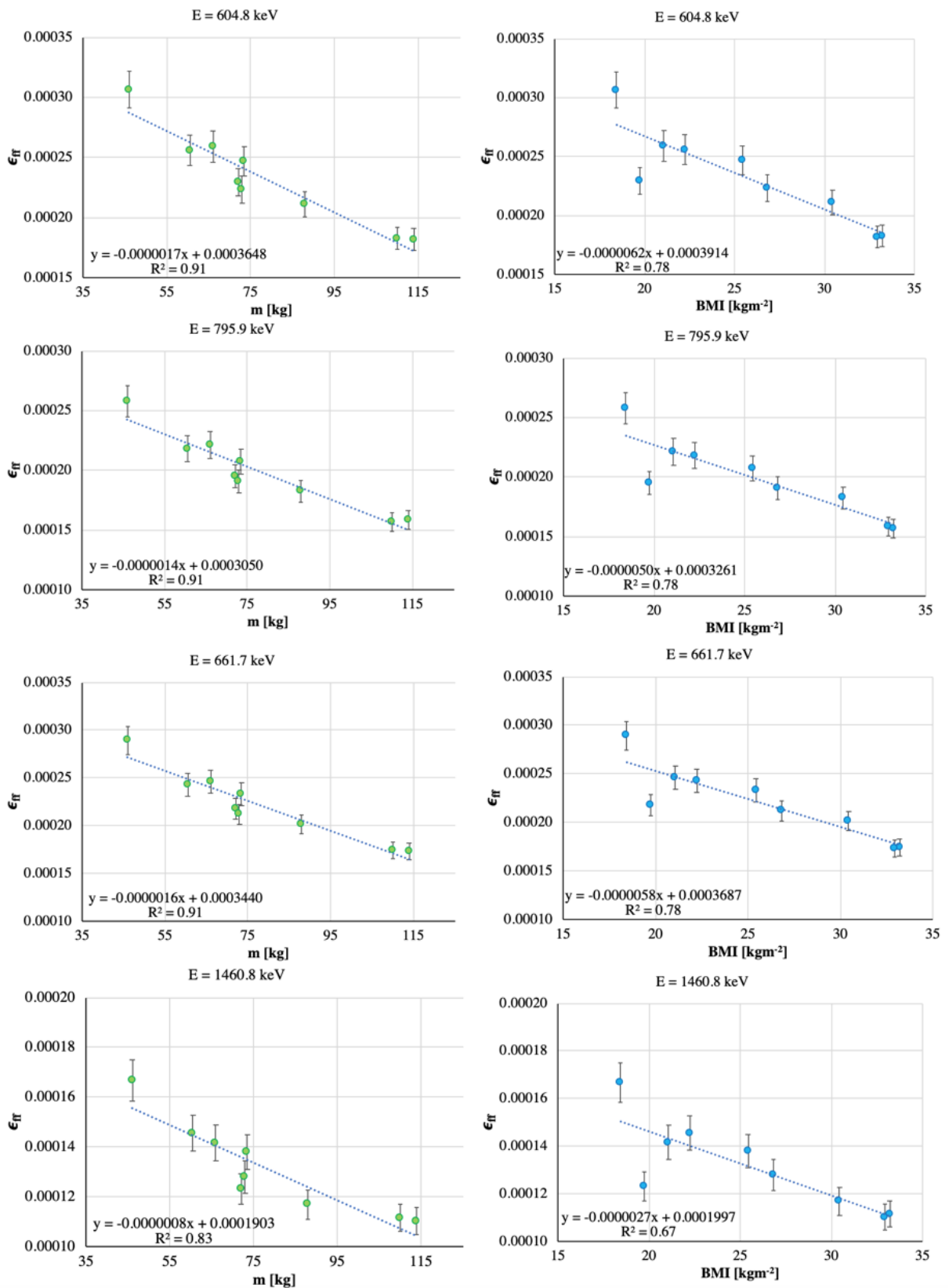
Kod	Masa [kg]	Długość [cm]	BMI [kgm^{-2}]
POLA IGOR 50	46	158	18.43
POLA IGOR 70	66	177	21.07
POLA IGOR 90	88	170	30.45
POLA IGOR 110	110	182	33.21
POLA PACJENT 55	73.5	170	25.43
POLA PACJENT 64	72	191	19.74
POLA PACJENT 65	73	165	26.81
POLA PACJENT 66	114	186	32.95
POLA PACJENT 69	60.5	165	22.22

W kolejnym kroku wykonywano pomiary wybranych wariantów fantomu POLA w SCC. Pomiary ze względów technicznych (absencja detektora Y) przeprowadzono tylko przy użyciu detektora X. Czas pomiaru wynosił od 7 godzin do 37 godzin przy czym średni czas to 14.5 godziny. Długość pomiaru podyktowana była potrzebą uzyskania właściwej statystyki zliczeń zwłaszcza dla linii widmowej ^{40}K o energii 1460.8 keV, z uwagi na fakt mniejszej aktywności tego izotopu w porównaniu z innymi w źródłach fantomu POLA oraz występowania tej linii w widmie tła spektrometru. Na podstawie otrzymanego widma promieniowania gamma i w oparciu o równanie 1.14 przygotowywano kalibrację wydajnościową dla każdej z wybranych geometrii pomiarowych uwzględniając tło spektrometru tj. obecność linii widmowej 661.7 keV (^{137}Cs) oraz 1460.8 keV (^{40}K) (przykład rys. 2.36).



Rysunek 2.36: Krzywa wydajności dla detektora X w SCC dla geometrii pomiarowej POLA PACJENT 55 [126].

Na podstawie zestawu równań krzywych wydajności przypisanych danym geometriom pomiarowym (tab. 2.26) dla detektora X SCC [126] utworzono zbiory wydajności rejestracji kwantów gamma zdefiniowane następującymi energiami: 604.7 keV, 795.9 keV (^{134}Cs), 661.7 keV (^{137}Cs), 1460.8 keV (^{40}K). Każdemu elementowi tak powstałych zbiorów (rozważanych dla każdej energii osobno) przypisano argumenty: 1. masy, 2. BMI. Otrzymane zależności przedstawiono na rys. 2.37.



Rysunek 2.37: Funkcje zależności wydajności rejestracji linii widmowych o energiach 604.7 keV, 795.9 keV (^{134}Cs), 661.7 (^{137}Cs), 1460.8 keV (^{40}K) detektora X SCC od masy oraz od BMI wybranych geometrii pomiarowych (wariantów fantomu POLA).

Zaprezentowane funkcje mają charakter liniowy. Krzywe trendu dopasowane do wyznaczonych punktów wykazują bardzo dobre, dobre lub zadowalające dopasowanie (masa: R^2 (0.83,0.91), BMI: R^2 (0.67,0.78)). Widoczna jest również zależność pomiędzy energią linii widmowej a współczynnikiem kierunkowym dopasowanej krzywej tj. im mniejsza energia linii widmowej tym większy współczynniki kierunkowy dopasowanej linii trendu.

Intuicyjnie, zależność gdzie argumentem jest BMI (parametr opisujący sylwetkę lepiej niż masa) powinna być bardziej wiarygodna niż zależność od masy. Tymczasem na wykresach obu zależności możemy obserwować punkty, które lepiej wpisują się w uwidoczniony trend i takie, które zdecydowanie leżą poza nim. Punktem, który w większości przedstawionych zależności odbiega od linii trendu jest wydajność rejestracji kwantów gamma dla każdej z wymienionych linii widmowych odpowiadająca geometrii pomiarowej POLA PACJENT 64. Jest to geometria, dla której masa fantomu POLA wynosiła 72 kg zaś długość 191 cm (tab.2.26) i była to najdłuższa z zaimplementowanych geometrii pomiarowych, przy jednocześnie relatywnie małej liczbie użytych elementów konstrukcyjnych POLA (relatywnie mała masa), co skutkowało stosunkowo małą liczbą źródeł użytych w trakcie kalibracji. W związku z wystąpieniem takiej sytuacji, postanowiono obarczyć każdą wydajność (dla energii konkretnej linii widmowej) obliczoną na podstawie wyznaczonych zależności dla dowolnej masy lub BMI największą spośród niepewności względnych obliczonych według równania 2.24, dla zbioru rozważanych geometrii pomiarowych (tab.2.26).

$$d\epsilon_{ff}(E) = \left| \frac{\epsilon_{ff}(E)_m - \epsilon_{ff}(E)_c}{\epsilon_{ff}(E)_m} \right| \quad (2.24)$$

gdzie: $\epsilon_{ff}(E)_m$ - wydajność dla danej linii widmowej oszacowana na podstawie wyników pomiarów dla wybranej geometrii pomiarowej, $\epsilon_{ff}(E)_c$ - wydajność dla danej linii widmowej obliczona na podstawie równań linii trendu dopasowanej do wyników zbioru wybranych geometrii pomiarowych.

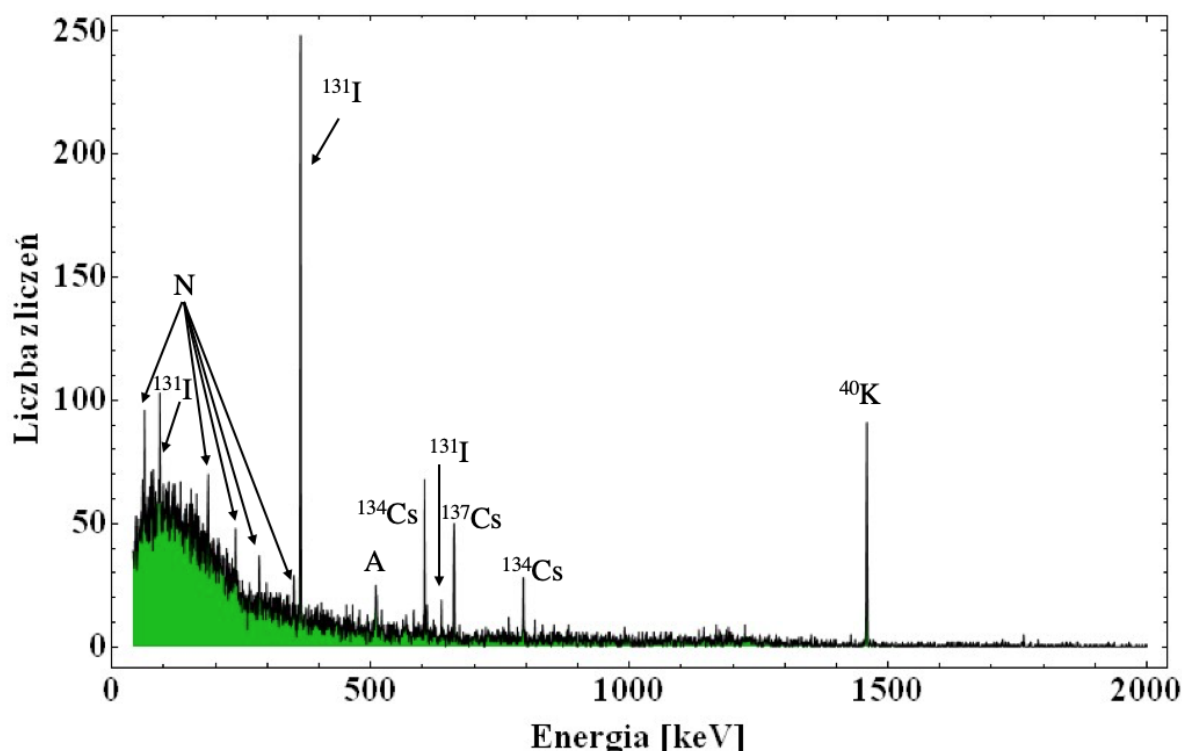
Zestaw wydajności dla wybranych linii widmowych charakteryzujących geometrie pomiarowe odpowiadające sylwetkom osób poddanych pomiarom (tab. 2.22) w zależności od masy i BMI został przedstawiony w tab. 2.27. Wydajności te w zależności od wyboru zmiennej (masy lub BMI) różnią się w zakresie od 0.17 % do 11 %, przy czym największe różnice w wydajności (w zależności od masy i BMI) zarejestrowano dla parametrów pacjenta P32 tj. masy równej 85 kg i BMI równemu 24.0. W tym przypadku podobnie jak przy tworzeniu zależności wydajności rejestracji danych linii widmowych od masy i BMI przy użyciu fantomu POLA uwagę zwraca fakt, że poddany pomiarom w SCC pacjent P32 był relatywnie wysoki (wzrost 188 cm tab. 2.22). Oczywiście nasuwa się wniosek, że im bardziej rozciągle źródło tj. odległość elementów konstrukcyjnych fantomu od detektora rośnie tym modele zależności wydajności rejestracji kwantów gamma w zależności od masy i BMI są bardziej rozbieżne.

Tablica 2.27: Zestawienie wydajności rejestracji kwantów gamma o wybranych energiach dla geometrii pomiarowych całego ciała odpowiadających masom i BMI osób poddanych pomiarom, dla detektora X SCC.

Kod	Masa [kg]	$\epsilon_{ff}(E)$			
		604.7 keV	795.7 keV	661.7 keV	1460.8 keV
P1	55	0.000275 ± 0.000028	0.000228 ± 0.000023	0.000256 ± 0.000026	0.000146 ± 0.000016
P6	68	0.000250 ± 0.000025	0.00021 ± 0.000023	0.000235 ± 0.000024	0.000136 ± 0.000015
P7	70	0.000246 ± 0.000025	0.000207 ± 0.000021	0.000232 ± 0.000023	0.000134 ± 0.000015
P8	56	0.00027 ± 0.000027	0.000227 ± 0.000023	0.000254 ± 0.000025	0.000146 ± 0.000016
P34	82	0.000226 ± 0.000023	0.00019 ± 0.000019	0.000213 ± 0.000021	0.000115 ± 0.000013
P35	54	0.000273 ± 0.000027	0.000229 ± 0.000023	0.000258 ± 0.000026	0.000147 ± 0.000016
P2	63	0.000258 ± 0.000026	0.000217 ± 0.000022	0.000243 ± 0.000024	0.00014 ± 0.000015
P3	83	0.000224 ± 0.000022	0.000189 ± 0.000019	0.000211 ± 0.000021	0.000124 ± 0.000014
P4	65	0.000255 ± 0.000026	0.000227 ± 0.000023	0.000254 ± 0.000025	0.000146 ± 0.000016
P5	60	0.000263 ± 0.000026	0.000221 ± 0.000022	0.000248 ± 0.000025	0.000142 ± 0.000016
P32	85	0.000221 ± 0.000022	0.000186 ± 0.000019	0.000208 ± 0.000021	0.000122 ± 0.000013
P36	60	0.000263 ± 0.000026	0.000221 ± 0.000022	0.000248 ± 0.000025	0.000142 ± 0.000016
Kod	BMI [kgm ⁻²]	$\epsilon_{ff}(E)$			
		604.7 keV	795.7 keV	661.7 keV	1460.8 keV
P1	17.0	0.000286 ± 0.000026	0.000241 ± 0.000022	0.00027 ± 0.000024	0.000154 ± 0.000029
P6	25.3	0.000235 ± 0.000021	0.0002 ± 0.000018	0.000222 ± 0.000020	0.000131 ± 0.000025
P7	22.3	0.000253 ± 0.000023	0.000215 ± 0.000019	0.000239 ± 0.000022	0.000139 ± 0.000026
P8	23.0	0.000249 ± 0.000022	0.000211 ± 0.000019	0.000235 ± 0.000021	0.000138 ± 0.000026
P34	26.2	0.000229 ± 0.000021	0.000195 ± 0.000018	0.000217 ± 0.000020	0.000129 ± 0.000025
P35	20.6	0.000264 ± 0.000024	0.000223 ± 0.000020	0.000249 ± 0.000022	0.000144 ± 0.000027
P2	20.8	0.000262 ± 0.000024	0.000222 ± 0.000020	0.000248 ± 0.000022	0.000144 ± 0.000027
P3	28.7	0.000213 ± 0.000019	0.000183 ± 0.000016	0.000202 ± 0.000018	0.000122 ± 0.000023
P4	22.5	0.000214 ± 0.000019	0.000214 ± 0.000019	0.000238 ± 0.000021	0.000139 ± 0.000026
P5	18.9	0.000274 ± 0.000025	0.000232 ± 0.000021	0.000259 ± 0.000023	0.000149 ± 0.000028
P32	24.0	0.000243 ± 0.000022	0.000206 ± 0.000019	0.00023 ± 0.000021	0.000135 ± 0.000026
P36	23.4	0.000246 ± 0.000022	0.000209 ± 0.000019	0.000233 ± 0.000021	0.000136 ± 0.000026

2.3.2 Wyniki pomiarów pacjentów w SCC

Czas pomiaru pacjentów w SCC wynosił ok. 1 godziny. W wyniku pomiaru otrzymywano dwa widma promieniowania gamma (det. X i det. Y). Detektor scyntylicyjny nie był używany z uwagi na zbyt małą rozdzielczość i wysokie limity detekcji [119]. Przykład zarejestrowanego widma pacjenta P6 uzyskanego przy użyciu detektora X został zaprezentowany na rysunku 2.38. Na widmie można zidentyfikować linie widmowe ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs i ^{40}K . Linie dwóch ostatnich izotopów są również obecne w tle SCC.



Rysunek 2.38: Widmo pacjenta P6, czas pomiaru 3842 s, detektor X SCC - koaksjalny HPGe typu PopTop (ORTEC, GMX 30190) o względnej wydajności 30 %.

N - wybrane linie widmowe izotopów naturalnych występujące w tle SCC: 63.3 keV, 92.4 keV (^{234}Th), 186 keV ($^{226}\text{Ra} + ^{235}\text{U}$), 238.6 keV (^{212}Pb), 295.2 keV, 351.9 keV (^{214}Pb); A - 511 keV anihilacja

Na podstawie uzyskanych widm i wydajności dla określonych geometrii pomiarowych oszacowano aktywności lub minimalne mierzalne aktywności (wzór Currie [107]) izotopów zidentyfikowanych w wyniku pomiarów według zależności:

$$A(E) = \frac{\frac{N(E)_s}{t_s} - \frac{N(E)_t}{t_t}}{I(E)\epsilon_{ff}(E)} \quad (2.25)$$

gdzie: $A(E)$ - aktywność danego izotopu emitującego kwanty gamma o energii E, zaś pozostałe parametry zgodne z opisem równania 2.1

$$MDA(E) = \frac{2.706 + 4.653 \sqrt{B(E) + \frac{N(E)t_s}{t_t}}}{I(E)\epsilon_{ff}(E)t_s} \quad (2.26)$$

przy czym: $MDA(E)$ - minimalna mierzalna aktywność danego izotopu emitującego kwanty gamma o energii E , opis pozostałych parametrów zgodny z opisem równania 2.3 i 2.4.

Wyniki dla ^{131}I oszacowane dla geometrii pomiarowej tarczycy (jedna z geometrii - rozd. 2.3.1) uzyskane przy użyciu detektora X i Y zostały zebrane w tab. 2.28 i podane na dzień pomiaru (tab. 2.22). Zamieszczone niepewności uwzględniają jedynie składową związaną ze statystką liczby zliczeń dla danej linii widmowej bez uwzględnienia składowych związanych z położeniem tarczycy, które zgodnie z wynikami rozd. 2.3.1 wynoszą dla detektora X 50 % zaś dla detektora Y 30% obliczonej aktywności. Opracowane zestawienie pokazuje również, że wartości oszacowane na podstawie pomiarów wykonanych przy użyciu detektora Y są większe niż dla detektora X oraz charakteryzują się one większymi niepewnościami. Wyjaśnienie tej obserwacji opiera się na dwóch faktach. Po pierwsze, większa aktywność ^{131}I obliczona na podstawie widma z detektora Y wskazuje na to, że zidentyfikowany izotop znajdował się nie tylko w tarczycy ale również w innych częściach ciała (pomimo, że pacjenci poddawani byli pomiarom po wypróżnieniu). Po drugie, większe niepewności świadczą o większej statystyce i odległości detektora od głównego źródła danego izotopu.

Tablica 2.28: Wyniki aktywności ^{131}I oszacowane dla osób poddanych pomiarom w SCC przebywających w 2011 r. w Japonii (geometria tarczycy, detektory X i Y).

Kod	det. X A [Bq]	det Y A [Bq]
P1	73 ± 10	204 ± 34
P6	50.1 ± 7.2	367 ± 41
P7	<2.3	<47
P8	2.48 ± 0.72	<45
P34	<2.0	<37
P35	<2.0	39 ± 21

Oszacowane aktywności dla zidentyfikowanych w widmach izotopów Cs oraz ^{40}K (pochodzenia naturalnego) dla dwóch grup pacjentów (przebywających w Japonii w 2011 r. oraz mieszkańców Krakowa) otrzymane przy użyciu detektora X zostały zestawione w tab. 2.29. Przygotowano je w oparciu o kalibracje wydajnościowe dedykowane konkretnym pacjentom dla dwóch równoległych modeli gdzie zmiennymi są masa i BMI. Oszacowane wyniki nie różnią się w granicach niepewności bez względu na użyty model.

Wyniki dla ^{40}K zostały podane tylko w celach informacyjnych. Mogą one też posłużyć (choć w stopniu niewystarczającym) jako wskaźnik poprawności wykonanych analiz. Przyjmuje się, że zawartość K w organizmie człowieka standardowego (mężczyzna rasy kaukaskiej o masie 70 kg i wzroście 170 cm, w wieku między 20 a 30 lat [130]) wynosi ok. 140 g co oznacza (przy założeniu $^{40}\text{K} \text{ K}^{-1} = 0.000117$ [127]), że aktywność izotopu ^{40}K powinna być na poziomie 4 000 Bq [131]. Z uwagi na cechy osobnicze badanej grupy osób wynik ten może fluktuować. Niemniej jednak rząd wielkości aktywności wyznaczonych dla obu grup pacjentów odpowiada przytoczonej powyżej danej [131].

Tablica 2.29: Wyniki aktywności izotopów Cs oraz ^{40}K oszacowane na podstawie dedykowanych kalibracji SCC wg. modeli ze zmienną masą i BMI dla osób poddanych pomiarom w SCC (det. X) wchodzącym w skład dwóch grup 1. osób przebywających w Japonii w 2011 r. 2. mieszkańców Krakowa.

Grupa	Kod	A(m) [Bq]			A(BMI) [Bq]		
		$^{134}\text{Cs}^*$	^{137}Cs	^{40}K	$^{134}\text{Cs}^1$	^{137}Cs	^{40}K
1 ²	P1	<29	<30	2380 ± 330	<27	<28	2260 ± 520
	P6	155 ± 52	94 ± 20	4290 ± 600	164 ± 51	99 ± 20	4440 ± 960
	P7	<3	34 ± 11	4040 ± 540	<3	33 ± 12	3890 ± 850
	P8	45 ± 30	<29	2410 ± 370	36 ± 25	<31	2550 ± 580
	P34	<33	<34	4470 ± 590	<33	<53	4320 ± 950
	P35	40 ± 25	<26	3610 ± 500	42 ± 24	<27	3690 ± 800
2 ³	P2		<41	2960 ± 420		<40	2880 ± 650
	P3		<32	3380 ± 490		<33	3430 ± 770
	P4		<56	3350 ± 500		<57	3530 ± 790
	P5		68 ± 19	3250 ± 510		65 ± 19	3110 ± 750
	P32		<37	4990 ± 610		<33	4520 ± 980
	P36		<29	3550 ± 570		<31	3700 ± 810

¹ - wyniki podane jako średnia aktywność dla dwóch linii tj. 604.7 keV oraz 795.7 keV zaś niepewność w tym przypadku podano na poziomie 2σ (rozd. 2.1.1), „<” - MDA wyznaczone dla linii 604.7 keV, ² - grupa osób przebywających w Japonii w 2011 r., ³ - grupa mieszkańców Krakowa.

Wszystkie zaprezentowane wyniki zostaną zinterpretowane w rozdz. 3.

2.4 Identyfikacja izotopów promieniotwórczych we frakcji gazowej i aerozolowej powietrza w Krakowie w 2011 r.

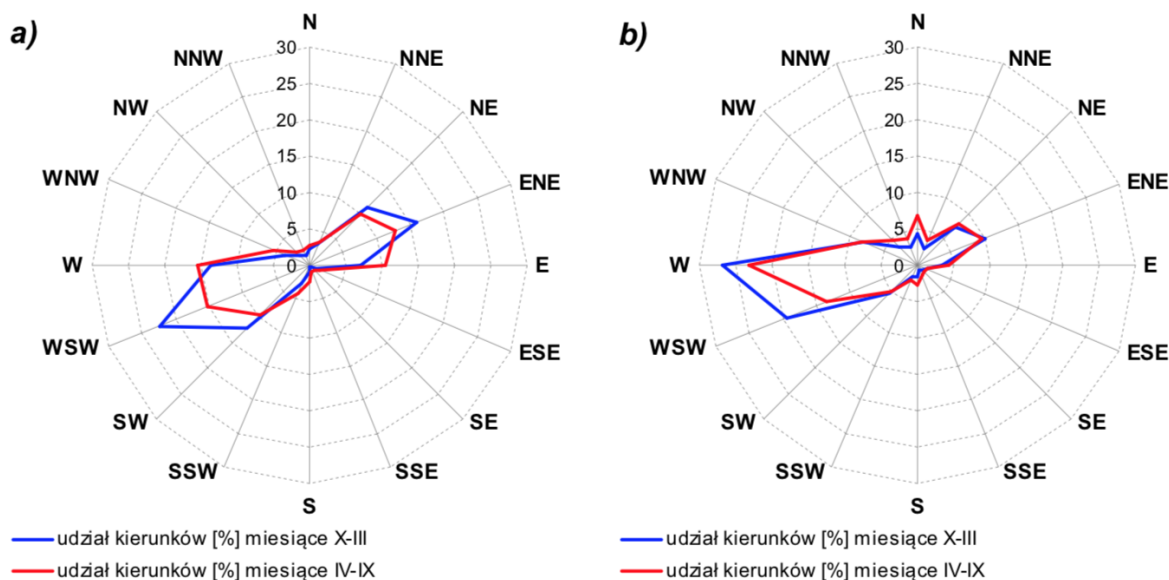
Analiza śladów izotopowych awarii FDNPP, które dotarły nad południową Polskę/Kraków wraz z masami powietrza znad Japonii została dokonana na podstawie próbek pobranych przy użyciu urządzeń wchodzących w skład systemu identyfikacji skażeń promieniotwórczych w atmosferze zlokalizowanego na terenie IFJ PAN. System ten działa w oparciu o trzy elementy. Dwie pierwsze składowe to stacje poboru aerozoli atmosferycznych z czego jedna (ASS-500) wchodzi w skład Sieci Wczesnego Wykrywania Skażeń Promieniotwórczych nadzorowanej przez CLOR na rzecz PAA zaś druga (MASS-500) stanowi własność Instytutu. Trzecim elementem jest kolektor całkowitego opadu atmosferycznego. W pracy zostaną zaprezentowane jedynie wyniki uzyskane przy użyciu stacji MASS-500 oraz kolektora opadu atmosferycznego, należących do IFJ PAN.

Dane dotyczące wykonawców i miejsc wykonania poszczególnych zadań wchodzących w zakres prezentowanych badań (rozd. 2.4) zostały zebrane w Dodatku A.

Charakterystyka miejsca poboru próbek

Kraków jest miastem położonym w południowej Polsce na pograniczu: Karpat Zachodnich z Podkarpaciem, Wyżyny Śląsko - Krakowskiej oraz Wyżyny Małopolskiej [132]. Położenie miasta na zrębach tektonicznych, w urozmaiconym topograficznie terenie powoduje, że stosunki anemologiczne są kształtowane nie tylko przez warunki ogólnocykluacyjne (np.: układ wyżów i niżów, poziomy gradient ciśnienia atmosferycznego) ale także ukształtowanie

terenu (położenie Krakowa w dolinie Wisły, która na danym terenie ma przebieg równoleżnikowy). Rozkład obserwowanych róż wiatru (tj. udziału kierunków, z których wieje wiatr) dla dwóch stacji Instytutu Meteorologii i Gospodarki Wodnej (IMGW) w Krakowie został przedstawiony na rys. 2.39. Na podstawie badań z lat 1961 - 1980 [133] oraz 2001 - 2005 [134] można wnioskować, że na terenie Krakowa dominuje wiatr z kierunków zachodnich zaś wiatr z kierunków wschodnich występuje z dużą częstością [134]. Wiatry z sektorów południkowych mają niewielki udział w prezentowanych różach wiatru (rys. 2.39).



Rysunek 2.39: Róże wiatru dla stacji a) Kraków - Balice oraz b) Kraków - Czyżyny z podziałem na półrocza chłodne (X - III) i ciepłe (IV - IX) opracowane na podstawie danych pomiarowych z lat 2001 - 2005 [134].

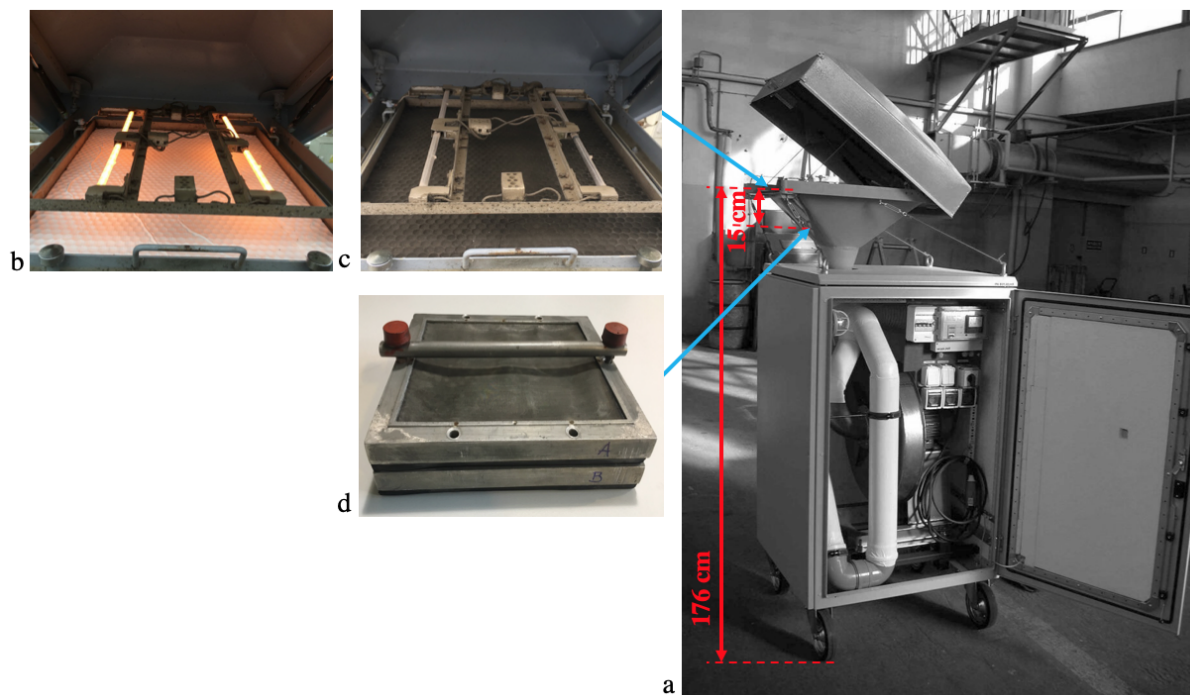
Zwarta zabudowa centrum miasta utożsamiana z szorstkością terenu determinuje szybkość wiatru powodując jej zmniejszenie oraz doprowadzając do pojawienia się stanu stagnacji powietrza. Częstość występowania ciszy wiatrowej w Krakowie określa się na poziomie 20 % - 30 % a udział wiatru o szybkości mniejszej niż 2 m s^{-1} (bardzo słabego) na poziomie ok. 40 %. Średnia szybkość wiatru w Krakowie mieści się pomiędzy 1.4 m s^{-1} a 2.7 m s^{-1} [134].

Do października 2012 r., a więc również w okresie związanym z badaniami (2011 r.) cały w/w system (2 stacje i kolektor) znajdował się na terenie IFJ PAN, na otwartej przestrzeni (najbliższe zabudowania w odległości 50 m) na wysokości 215 m n.p.m w miejscu o współrzędnych geograficznych $50^{\circ}05'32'' \text{ N}$ i $19^{\circ}53'27'' \text{ E}$. Stacja MASS-500 oraz kolektor całkowitego opadu atmosferycznego usytuowane były w odległości 8 m od siebie [43].

Stacja MASS-500

Stacja MASS-500 (rys. 2.40) to zmodyfikowana stacja poboru aerozoli ASS-500 (Aerosol Sampling Station). Została ona skonstruowana/zmodernizowana w ramach grantu PAA i uruchomiona na terenie IFJ PAN w 2001 r. Jest to stacja zaliczana do wysokowydajnych aspiratorów pyłów o średnim nominalnym przepływie powietrza $500 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$, przystosowana do pracy ciągłej w różnych warunkach atmosferycznych. Stacja MASS-500 służy do gromadzenia aerozoli atmosferycznych z przygruntowej warstwy powietrza na filtrach. W tym celu w stacji na wysokości 176 cm nad powierzchnią ziemi (rys. 2.40 a) instaluje się ramkę o wymiarach

42 cm × 52 cm z naciągniętym filtrem. Podczas badań wykorzystywano filtry Petrianov'a typu FPP - 15 - 1.5 (Postchlorinated Polyvinylchloride PCV Fiber), które charakteryzują się wysoką efektywnością zatrzymywania aerozoli. Efektywność ta dla cząstek o średnicy od 0.32 μm do 1.25 μm dla szybkości przepływu powietrza z przedziału 0,25 ms^{-1} - 0,4 ms^{-1} wynosi 95.6 %. Średnice włókien filtrów FPP - 15 - 1.5 zawierają się w przedziale od 0.5 μm do 2.5 μm , a średnice aerozoli osadzających się na takim filtrze są nie mniejsze niż 0.3 μm [135]. Dwa promienniki podczerwieni znajdujące się nad filtrem w stacji (rys. 2.40 b i c) zapobiegają zmianie efektywności retencji aerozoli na filtrze (zmianie oporności filtra dla aerozoli atmosferycznych) przy wzroście wilgotności powietrza.



Rysunek 2.40: Stacja MASS-500 w IFJ PAN : a) widok ogólny (autor zdjęcia: J.W. Mieltski), b) nowy filtr powietrza założony w stacji MASS-500 i włączone promienniki podczerwieni, c) filtr powietrza po 7-dniowym czasie ekspozycji, d) zestaw dwóch kaset na węgiel aktywny.

Stacja MASS-500 została wzbogacona w dodatkową opcję wychwytu frakcji gazowej powietrza co zrealizowano poprzez instalację w gardzieli stacji, 15 cm poniżej filtra powietrza, dwóch kaset każda o wymiarach 24 cm × 20.9 × 1.9 cm (wymiarzy zewnętrzne). Kasety te wypełniane były porcjami węgla aktywnego o objętości 500 cm^3 (rys. 2.40 d). W czasie badań wykorzystano węgiel aktywny impregnowany KI o granulacji 2 mm (IBJ-6, Gryskand, Hajnówka). Zastosowanie w/w filtra węglowego powoduje redukcję przepływu powietrza, który średnio wówczas wynosi 250 $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$.

Na powierzchni filtra, powietrza w czasie pracy stacji, gromadzone są cząstki pochodzenia naturalnego i antropogenicznego tj.: krzemionka - pył eoliczny przenoszony przez wiatr, glinokrzemiany potasu lub wapnia, tlenki metali np.: Si, Al, S, Cl, Na, K - związane z różnymi rodzajami działalności przemysłowej człowieka, siarczany wapnia, cząstki węgliste - związane z energetyką [43], [135], etc.. Okresowość występowania danego rodzaju cząstek związana jest z porami roku. W okresie zimowym (październik - kwiecień) dominują cząstki węgliste, w okresie późno - wiosennym i letnim głównie pyłki pochodzenia roślinnego. Natomiast wzrost

częstości występowania glinokrzemianów unoszonych w wyniku resuspensji kojarzono z okresami suchymi lub okresowym wzrostem szybkości wiatrów [135].

Stacja MASS-500 w czasie rutynowych prac działa w cyklu tygodniowym (od poniedziałku do poniedziałku).

Kolektor całkowitego opadu atmosferycznego

Kolektor całkowitego opadu atmosferycznego został włączony do systemu identyfikacji izotopów promieniotwórczych w IFJ PAN w 2005 r. Został on zbudowany ze stali nierdzewnej i ma postać rynny ograniczonej ściankami (rys. 2.41 b). Jego powierzchnia wynosi 2.28 m^2 a najniższy punkt znajduje się na wysokości 180 cm nad ziemią (rys. 2.41 a). Poniżej kolektora zostało zbudowane pomieszczenie, w którym gromadzony jest opad atmosferyczny w plastikowych beczkach o objętości 160 dm^3 połączonych z rynną kolektora za pomocą gumowego węża (rys. 2.41 c). Kolektor miał również opcję podgrzewania rynny na wypadek niekorzystnych warunków atmosferycznych i zamarznięcia gromadzonego materiału na powierzchni kolektora, co uniemożliwiało jego swobodny transport do beczek. Pomieszczenie poniżej rynny używane jest także do wstępnego odparowywania zgromadzonych próbek.



Rysunek 2.41: Kolektor całkowitego opadu atmosferycznego w IFJ PAN: a) widok ogólny, b) stalowa rynna kolektora, c) beczka służąca do gromadzenia opadu atmosferycznego połączona z rynną kolektora.

W kolektorze całkowitego opadu atmosferycznego gromadzony jest materiał podlegający zarówno mokrej jak i suchej depozycji. Głównymi jego składowymi są produkty kondensacji pary wodnej takie jak: deszcz, mżawka, śnieg, krupy, grad, etc. oraz tak jak w przypadku filtrów powietrza np.: pyły eoliczne, pyłki roślin lub aerozole antropogeniczne.

Pobór próbek przy użyciu kolektora całkowitego opadu atmosferycznego w czasie rutynowych prac odbywa się w cyklu miesięcznym (4 tygodnie).

2.4.1 Frakcja gazowa przygruntowej warstwy powietrza

Idea zastosowania układu dwóch kaset z wkładem z węgla aktywnego

Filtr węglowy do pułapkowania frakcji gazowej powietrza, pomyślany jako układ dwóch kaset, został zaprojektowany i zaimplementowany w stacji MASS-500. Jego nieskomplikowana konstrukcja tj. układ identycznych elementów ułożonych jeden nad drugim oparta była o teorię, w której stosunek wartości wybranej obserwabli dla kolejnych dwóch elementów filtra (tj. np.: kasyt drugiej do kasyt pierwszej) jest stały. Tak sformułowana i przyjęta zasada działania rozważanego układu odpowiada definicji ciągu geometrycznego. W naszym przypadku kolejne wyrazy ciągu utożsamiane były ze stężeniem aktywności zdeponowanych izotopów w poszczególnych kasetach. Na podstawie powyżej zdefiniowanych założeń dla układu dwóch kaset prawdziwa jest więc równość:

$$\frac{C_2}{C_1} = q \quad (2.27)$$

gdzie: C_1 , C_2 - stężenia aktywności danego izotopu zdeponowanego na węglu aktywnym z kasyt o numerze 1 i 2, q - iloraz dwóch kolejnych wyrazów ciągu geometrycznego.

W naszym przypadku $q < 1$ gdyż stężenie aktywności izotopu zarejestrowane w każdym kolejnym elemencie filtra powinno być mniejsze niż w elemencie poprzedzającym. Przyjmując jednocześnie, że nieskończony ciąg kaset zaabsorbowałby całkowicie badany izotop znajdujący się we frakcji gazowej w strumieniu powietrza kierowanym na filtr, możemy oszacować inicjalne stężenie aktywności danego izotopu w rozważanym medium (przed przejściem przez filtr) korzystając z wzoru na sumę nieskończonego ciągu geometrycznego tj.:

$$C = \frac{C_1}{1 - q} \quad (2.28)$$

Z całego rozważania wynika, że układ dwóch kaset jest wystarczający do przeprowadzenia obliczeń stężenia danego izotopu we frakcji gazowej powietrza. Przedstawiony filtr węglowy był wykorzystywany przed 2011 r. w celu oszacowań stężeń ^{131}I w powietrzu w szpitalu endokrynologicznym [136].

Metodyka badań izotopów gamma - promieniotwórczych we frakcji gazowej przygruntowej warstwy powietrza

Procedura badań izotopów we frakcji gazowej powietrza składała się z kilku etapów. Pierwszym z nich był pobór próbki. Odmierzony (dwie porcje po 500 ml), wysuszony w temperaturze 105 °C (usunięcie śladów wilgoci mogących różnicować wydajność absorpcji węgla w dwóch kasetach oraz usunięcie potencjalnych śladów ^{131}I) węgiel aktywny był aplikowany do dwóch kaset, które łączono ze sobą za pomocą specjalnego uchwytu (rys. 2.40 d). Tak przygotowany zestaw umieszczany był w gardzieli stacji poboru aerozoli (poniżej aerozolowego filtra powietrza) i zostawiany na zaplanowany czas w uruchomionej stacji MASS-500. Po zakończonej ekspozycji filtr był demontowany a węgiel aktywny przesypywany do odpowiednich naczyń Marinelli używanych do pomiarów gamma - spektrometrycznych.

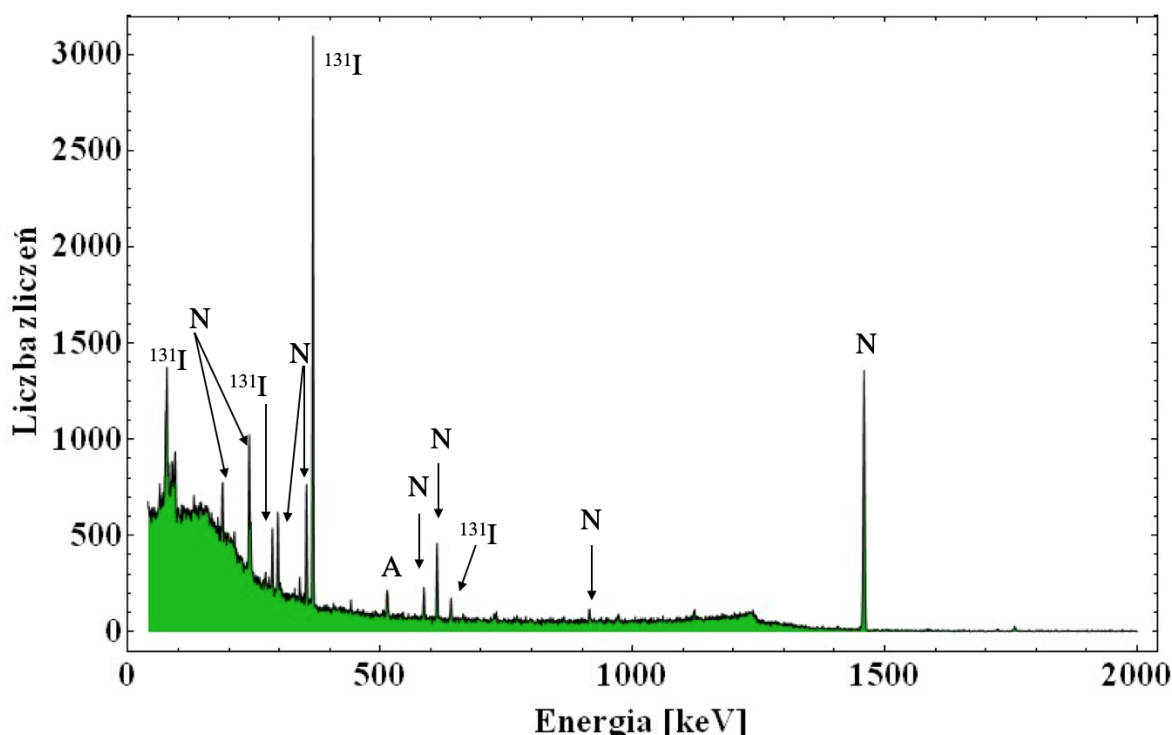
Tablica 2.30: Zestawienie podstawowych informacji dotyczących próbek gazowej i aerozolowej frakcji przygruntowej warstwy powietrza w Krakowie pobranych w okresie od 14.03.2011 do 26.04.2011.

Lp.	Kod		Próbkowanie			V [m ³]	m _a [g]
	frakcja gazowa	frakcja aerozolowa	start	koniec	t _p [h]		
1	M111121 M211121	M11121	21.03.11 11:25	24.03.11 10:15	70.8	17 957	1.9849
2	M111122 M211122	M11122	24.03.11 10:35	25.03.11 10:02	23.5	5 975	0.6074
3	M111123 M211123	M11123	25.03.11 10:22	26.03.11 10:50	24.5	6 386	0.6432
4	M111124 M211124	M11124	26.03.11 11:10	27.03.11 8:30	21.3	5 256	0.3721
5	M111125 M211125	M11125	27.03.11 8:50	28.03.11 12:16	27.4	7 468	0.5078
6	M111131 M211131	M11131	28.03.11 12:34	29.03.11 9:12	20.6	5 385	0.5886
7	M111132 M211132	M11132	29.03.11 9:36	30.03.11 8:10	22.6	5 763	1.1716
8	M111133 M211133	M11133	30.03.11 8:27	31.03.11 12:00	27.6	7 264	1.0935
9	M111134 M211134	M11134	31.03.11 12:20	01.04.11 10:15	21.9	6 177	0.6745
10	M111135 M211135	M11135	01.04.11 10:35	02.04.11 11:36	25.0	6 396	0.6168
11	M111136 M211136	M11136	02.04.11 11:50	03.04.11 12:37	24.8	6 628	1.5072
12	M111137 M211137	M11137	03.04.11 12:53	04.04.11 11:04	22.2	6 230	0.5168
13	M111141 M211141	M11141	04.04.11 11:17	05.04.11 17:35	30.3	8 201	0.5344
14	M111142 M211142	M11142	05.04.11 18:01	06.04.11 11:00	17.0	4 261	0.5035
15	M111143 M211143	M11143	06.04.11 11:10	07.04.11 10:45	23.6	6 689	0.5467
16	M111144 M211144	M11144	07.04.11 12:00	08.04.11 10:57	23.0	6 554	0.4644
17	M111145 M211145	M11145	08.04.11 11:20	09.04.11 9:24	22.1	6 067	0.6173
18	M111146 M211146	M11146	09.04.11 9:36	10.04.11 9:52	24.3	6 788	0.3044
19	M111147 M211147	M11147	10.04.11 10:03	11.04.11 10:30	24.5	6 625	0.2221
20	M111151 M211151	M11151	11.04.11 10:30	13.04.11 10:50	48.3	12 882	0.6721
21	M111152 M211152	M11152	13.04.11 11:10	15.04.11 12:40	49.5	13 106	0.3820
22	M111153 M211153	M11153	15.04.11 12:53	18.04.11 10:25	69.5	18 233	1.2762
23	M111161 M211161	M11161	18.04.11 10:35	21.04.11 11:26	72.9	14 775	1.1959
24	M111162 M211162	M11162	21.04.11 11:44	26.04.11 10:42	119.0	29 154	1.5350

M1 - kod kasety górnej filtra węglowego, M2 - kod kasety dolnej filtra węglowego, t_p - czas próbkowania, V - przepływ (objętość przefiltrowanego powietrza), m_a - masa aerozoli zdeponowanych na filtrze powietrza

W ten sposób w okresie od 14 marca 2011 r. do 26 kwietnia 2011 r. pobrano łącznie 24 podwójne próbki frakcji gazowej powietrza. Podstawowe dane dotyczące czasu ekspozycji filtrów węglowych i przepływu powietrza w stacji MASS-500 zostały zebrane w tab. 2.30. Z uwagi na to, że ekspozycje filtrów węglowych były skorelowane z ekspozycją filtrów Petriano-*nov*'a (próbki pochodzące z jednej stacji) w tabeli tej znalazły się także dane dotyczące frakcji aerozolowej. Czas poboru próbek był zdeterminowany stężeniem antropogenicznych izotopów promieniotwórczych w powietrzu i zawierał się w przedziale od 17 godzin do 119 godzin. Czas ten miał wpływ na objętość powietrza przefiltrowanego przez stację MASS-500. Minimalna wartość przepływu to 4 261 m³ zaś maksymalna to 29 154 m³ (tab. 2.30).

W dniu zakończenia próbkowania przygotowane próbki były poddawane pomiarom gamma - spektrometrycznym. W tym celu wykorzystano dwa koaksjalne detektory HPGe o różnej wydajności względnej, przy czym większą wydajność 11 % posiadał detektor produkcji Silena SpA. Kalibrację wydajnościową dla geometrii pomiarowej Marinelli wykonano przy użyciu certyfikowanego źródła SZM-3 (POLATOM) zawierającego w swym składzie izotopy gamma - promieniotwórcze. Dodatkowo, została ona uzupełniona wynikami pomiarów rozpadu ¹³¹I (również w geometrii Marinelli). Czas pomiaru próbek zmieniał się w granicach od 2.4 godzin do 30 godzin i był uzależniony od aktywności próbki. Z tego samego powodu pomiary próbek pochodzących z kaset dolnych (nr. 2) były dłuższe niż pomiary próbek z kaset górnych (nr. 1). Na rysunku 2.42 przedstawiono widmo gamma - spektrometryczne próbki frakcji gazowej zdeponowanej w górnej kasecie filtra węglowego. Oprócz linii widmowych izotopów naturalnych można na nim zidentyfikować linie ¹³¹I. Był to jedyny sztuczny izotop zaobserwowany we frakcji gazowej powietrza.



Rysunek 2.42: Widmo próbki frakcji gazowej powietrza MA11132, czas pomiaru 78720 s, detektor koaksjalny HPGe (Silena SpA) o względnej wydajności 11 %.

N - wybrane linie widmowe izotopów naturalnych: 186 keV (²²⁶Ra + ²³⁵U), 238.6 keV (²¹²Pb), 295.2 keV, 351.9 keV (²¹⁴Pb), 583.2 keV (²⁰⁸Tl), 609.3 keV (²¹⁴Bi), 911.2 keV (²²⁸Ac), 1460.8 keV (⁴⁰K); A - 511 keV anihilacja

Aktywność ($A(E)$) oraz MDA dla ^{131}I szacowano na podstawie zależności odpowiednio 2.25 i 2.26 przy założeniu braku sygnału w/w izotopu w tle spektrometru. Biorąc pod uwagę relatywnie, krótki czas połowicznego rozpadu ^{131}I (8.03 dnia, tab.1.6) wprowadzono 3 poprawki, które miały korygować szacowane wyniki ze względu na rozpad izotopu w czasie próbkowania (K_p), w czasie pomiędzy zakończeniem próbkowania a rozpoczęciem pomiaru (K_w) oraz w czasie pomiaru próbki (K_s). Wzory zastosowanych poprawek przedstawiono poniżej.

$$K_p = \frac{1 - e^{-\lambda_i t_p}}{\lambda_i t_p} \quad (2.29)$$

$$K_w = e^{-\lambda_i t_w} \quad (2.30)$$

$$K_s = \frac{1 - e^{-\lambda_i t_s}}{\lambda_i t_s} \quad (2.31)$$

gdzie: t_p - czas próbkowania, t_w - czas pomiędzy zakończeniem próbkowania a rozpoczęciem pomiaru, t_s - czas pomiaru próbki, λ_i - stała rozpadu danego izotopu

$$\lambda_i = \frac{\ln 2}{T_{i1/2}} \quad (2.32)$$

Stąd stężenie aktywności danego izotopu zdeponowanego w kasecie filtra węglowego (w naszym przypadku ^{131}I) oraz MDC dla wybranej linii widmowej tego izotopu szacowano korzystając z zależności:

$$C(E)_i = \frac{A(E)_i}{VK} \quad (2.33)$$

$$MDC(E)_i = \frac{MDA(E)_i}{VK} \quad (2.34)$$

gdzie: $i=1, 2$ (kaseta górna, kaseta dolna), V - objętość przefiltrowanego powietrza, $K = K_p K_w K_s$

Uwzględniając powyższe zależności ($C(E)_i$) we wzorze na sumę nieskończonego ciągu geometrycznego (rów. 2.28) szacowano stężenia aktywności ^{131}I we frakcji gazowej przygruntowej warstwy powietrza. Oczywiście ta metodologia zawodziłaby gdyby obliczone stężenie aktywności izotopu w kasecie nr. 2 było poniżej MDC. Wówczas oznaczałoby to, że całkowita depozycja nastąpiła w kasecie nr. 1. Takich przypadków jednak w rozważanym okresie badań nie stwierdzono. Wyniki analiz zostały zamieszczone w tab. 2.33 w rozdz. 2.4.4.

Dodatkowo, bazując na wynikach z rozważanego okresu oraz korzystając z rezultatów eksploatacji stacji MASS-500 z filtrem węglowym w roku 2007, kiedy nie zidentyfikowano żadnych sztucznych izotopów we frakcji gazowej przygruntowej warstwy powietrza, podjęto próbę oszacowania limitu detekcji całej metody badawczej, w czasie rutynowych prac MASS-500. Zakładając, że: ekspozycja filtra węglowego trwa 7 dni (rutynowy cykl pracy stacji MASS-500), pomiar następuje tuż po przeniesieniu węgla aktywnego do naczynia pomiarowego (tj. naczynia Marinelli) na detektorze HPGe o wydajności 20 % z osłoną aktywną (osłona antykoincydencyjna) i pasywną (parafina, 10 cm ołowiu współczesnego, 5 cm ołowiu z wytopu etruskiego – 2,5 tysiąca lat, warstwa kadmu i miedzi elektrolitycznej) [44] oraz że czas pomiaru to 7 dni możemy oszacować MDC na podstawie zależności 2.34. Tym razem V - oznaczać

będzie średni przepływ tygodniowy oszacowany na podstawie całorocznych danych zebranych w 2007 r., który wynosił $24\,266\text{ m}^3$. Z tego okresu również wybrano losowo próbkę, której dane posłużyły do szacowania MDC. Otrzymany wynik $3.9\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ utożsamiano z MDC dla kasety nr. 2. Następnie korzystając z zależności 2.27 oraz przyjmując q jako średni iloraz stosunków stężeń aktywności ^{131}I zdeponowanego w kasecie nr. 2 do zdeponowanego w kasecie nr. 1 z rozważanego okresu badań w 2011 r. (14 marzec - 26 kwiecień) oszacowano MDC dla kasety nr. 1, który wyniósł $11\ \mu\text{Bq m}^{-3}$. Mając te dane można na podstawie wzoru 2.28 oszacować minimalne mierzalne stężenie aktywności ^{131}I we frakcji gazowej powietrza, które przy zastosowanym i opisanym powyżej systemie poboru próbek i ich pomiaru będzie przez nas mierzalne i traktować je będzie można jako limit detekcji całej metody badawczej. W naszym przypadku to graniczne stężenie aktywności ^{131}I dla założonych powyżej warunków wynosiło $17\ \mu\text{Bq m}^{-3}$.

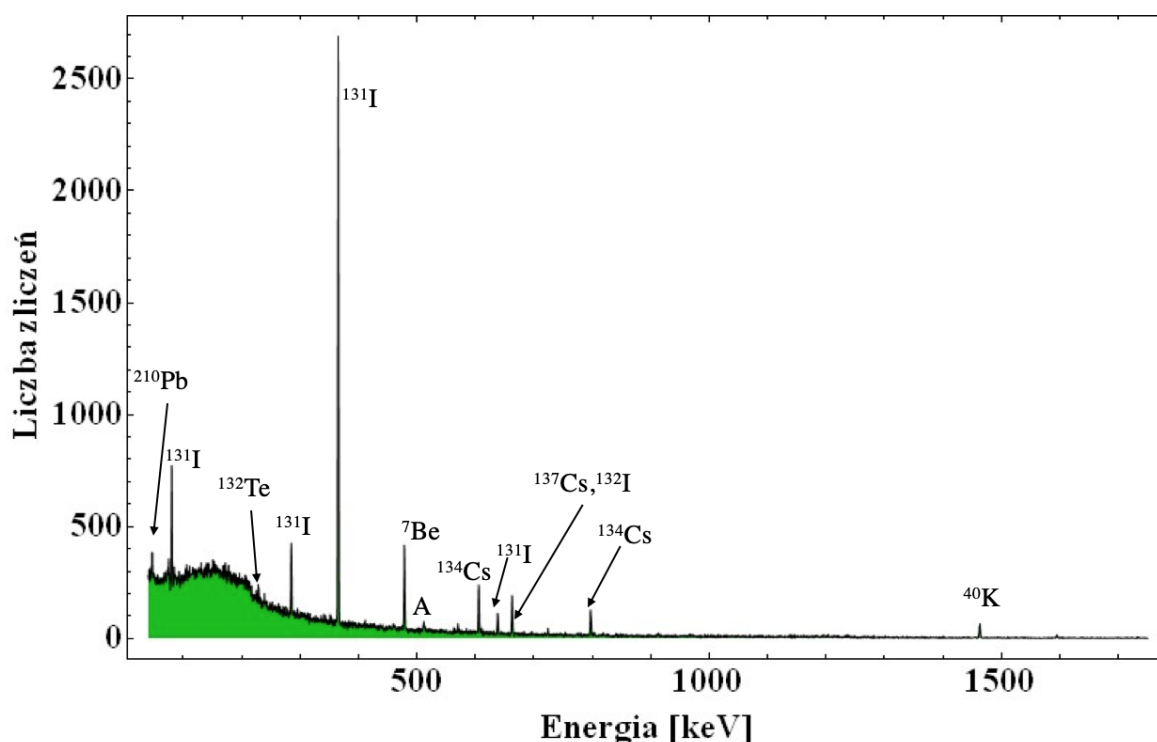
2.4.2 Frakcja aerozolowa przygruntowej warstwy powietrza

Metodyka badań izotopów gamma - promieniotwórczych we frakcji aerozolowej przygruntowej warstwy powietrza

Aerozole atmosferyczne przygruntowej warstwy powietrza, w czasie prezentowanych badań, pobierane były przy użyciu filtrów Petrianov'a w stacji MASS-500. Każdy filtr (o określonych wymiarach, paragraf „Stacja MASS-500”) przed instalacją w stacji poboru aerozoli był ważony a następnie rozciągany na specjalnej ramce (rys. 2.40 a, b i c) i umieszczany nad filtrem węglowym. Czas ekspozycji filtrów aerozolowych, tak jak to zostało napisane wcześniej, był skorelowany z czasem ekspozycji filtrów węglowych (2 rodzaje próbek pobierane w tym samym czasie) i uzależniony od stężenia sztucznych izotopów promieniotwórczych w powietrzu. Po zakończonym próbkowaniu, filtr był demontowany i poddawany około godzinnym pomiarom gamma - spektrometrycznym jakościowym. Następnie po kilku dniach filtr był ponownie ważony i sprasowywany do geometrii krążka o średnicy 50 mm oraz grubości ok. 4.5 mm. Na podstawie masy filtra przed i po ekspozycji szacowano masę aerozoli zdeponowanych na filtrze. Podstawowe dane dotyczące 24 pobranych próbek aerozoli znajdują się w tab. 2.30. Na ich podstawie można wnioskować, że masa aerozoli gromadzonych na filtrze nie była funkcją przefiltrowanego powietrza a tym samym czasu próbkowania. W obu przypadkach zależności wykazują słabe korelacje ($m_a(V)$: $R^2=0.42$, $m_a(t_p)$: $R^2=0.40$) co z kolei nasuwa wniosek, że w rozważanym okresie zmieniało się zapylenie powietrza.

Po kilku dniach od próbkowania, przeprowadzano właściwe pomiary gamma - spektrometryczne (jakościowe i ilościowe) przygotowanych filtrów powietrza. W tym celu wykorzystano trzy detektory HPGe tj. detektor planarny, detektor koaksjalny (Silena SpA) o względnej wydajności 11 % oraz detektor koaksjalny PopTop (ORTEC, GMX 30190) o względnej wydajności 30 %. Kalibracja wydajnościowa tych detektorów została wykonana przy użyciu certyfikowanego źródła izotopów gamma - promieniotwórczych 40/10 (POLATOM) w geometrii odpowiadającej geometrii filtru powietrza. Średni czas pomiaru próbki filtru powietrza wynosił ok. 23 godzin. Przykładowe widmo uzyskane podczas pomiarów zostało przedstawione na rys. 2.43.

Wśród antropogenicznych izotopów gamma - promieniotwórczych zidentyfikowanych w próbkach aerozoli atmosferycznych znalazły się: ^{131}I , $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$, ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs . Ich stężenia aktywności (C(E)) oraz MDC szacowano na podstawie zależności odpowiednio 2.33 oraz 2.34. Uzyskane wyniki analiz zostały zebrane w tab. 2.33 w rozdz. 2.4.4.



Rysunek 2.43: Widmo próbki frakcji aerozolowej powietrza M11132, czas pomiaru 60420 s, detektor planarny HPGe.

A - 511 keV anihilacja

Metodyka badań izotopów alfa - promieniotwórczych we frakcji aerozolowej przygruntowej warstwy powietrza

Oznaczenia izotopów alfa - promieniotwórczych takich pierwiastków jak: Pu, Am i Cm odbywało się w oparciu o procedury radiochemiczne opracowane w Pracowni Badań Skazań Radioaktywnych IFJ PAN dla próbek filtrów powietrza. Szczegółowy ich opis znajduje się w pracach autora [43], [116], [137], [138] oraz w Dodatku C.

Biorąc pod uwagę potencjalny poziom stężeń aktywności aktywności, które mogły się pojawić w powietrzu i byłyby powiązane z awarią FDNPP oraz bazując na limitach detekcji związanych z całą metodą badawczą a także poziomach występowania wspomnianych aktywności w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie [43], [116], [137] zdecydowano o podziale zestawu filtrów powietrza eksponowanych w stacji MASS-500 w okresie 21.03.2011 - 11.04.2011 na dwie części tj. 1. próbka od 21.03.2011 do 2.04.2011 (10 filtrów) oraz 2. próbka od 2.04.2011 - 11.04.2011 (9 filtrów). Sumaryczna objętość powietrza przefiltrowanego przez pierwszą grupę filtrów wynosiła 74 027 m³ zaś przez drugą 58 053 m³. Zastosowany podział został podyktowany obserwacją zmiany stężeń aktywności izotopów gamma - promieniotwórczych w powietrzu (tab. 2.33). Pierwszy okres to czas kiedy obserwowano maksymalne wartości stężeń aktywności m.in. dla ¹³¹I we frakcji aerozolowej zaś drugi okres to czas ewidentnego spadku rejestrowanych stężeń aktywności w wyniku zarówno depozycji suchej i mokrej oraz rozpadu jąder ¹³¹I.

Pomiar otrzymanych w wyniku zastosowanych procedur radiochemicznych źródeł Pu oraz wspólnego Am i Cm (podobnie jak w rozdz. 2.1) odbywał się przy użyciu spektrometru promieniowania alfa AlphaQuattro firmy Silena z detektorami typu PIPS o powierzchni aktyw-

nej 450 mm². Oszacowane na podstawie uzyskanych widm stężenia aktywności i/lub MDC zidentyfikowanych izotopów tj. ²³⁸Pu, (²³⁹+²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am, ²⁴²Cm zostały przedstawione w tab. 2.34. Poprawność zastosowanej metody badawczej została sprawdzona i potwierdzona przy użyciu materiału referencyjnego IAEA 375 [138]. Dane eksperymentalne wraz z danymi referencyjnymi zostały zamieszczone w tab. 2.31.

Tablica 2.31: Stężenia aktywności ²³⁸Pu, ²³⁹+²⁴⁰Pu oraz ²⁴¹Am materiale referencyjnym IAEA 375 [138].

Material referencyjny	IAEA 375
Dane certyfikowane	C [Bq/kg]; 95 % Przedział ufności
²³⁸ Pu	0.071; 0.056 - 0.085
²³⁹ + ²⁴⁰ Pu	0.30 ; 0.26 - 0.34
²⁴¹ Am	0.13; 0.11 - 0.15*
Wartości obliczone	C [Bq/kg]
²³⁸ Pu	0.055 ± 0.004
²³⁹ + ²⁴⁰ Pu	0.266 ± 0.027
²⁴¹ Am	0.30 ± 0.03

* Użyty materiał zawiera izotopowe ślady awarii w Czarnobylu, w związku z tym wartość stężenia aktywności podana dla ²⁴¹Am na rok 1991 powinna być uzupełniona o wartość dla ²⁴¹Am jaki powstał między 1991 r. a 2011 r. z rozpadu ²⁴¹Pu. Z uwagi na brak danych na temat ²⁴¹Pu nie można przeprowadzić takich oszacowań. Można jedynie stwierdzić, że wartość otrzymana w 2011 r. powinna być większa niż wartość referencyjna.

2.4.3 Całkowity opad atmosferyczny

Próbki całkowitego opadu atmosferycznego prezentowane w niniejszym opracowaniu były pobierane w okresie od 11.03.2011 do 31.10.2011. Czas próbkowania pierwszych dwóch był krótszy od rutynowo stosowanego miesięcznego cyklu, z uwagi na antropogeniczne izotopy promieniotwórcze występujące w atmosferze (tab. 2.33). Gdy ich stężenie aktywności malało wydłużano czas pobierania próbek powracając do miesięcznego cyklu (7 próbek). Łącznie pobrano 9 próbek. Podstawowe dane dotyczące materiału badawczego zostały zebrane w tab. 2.32.

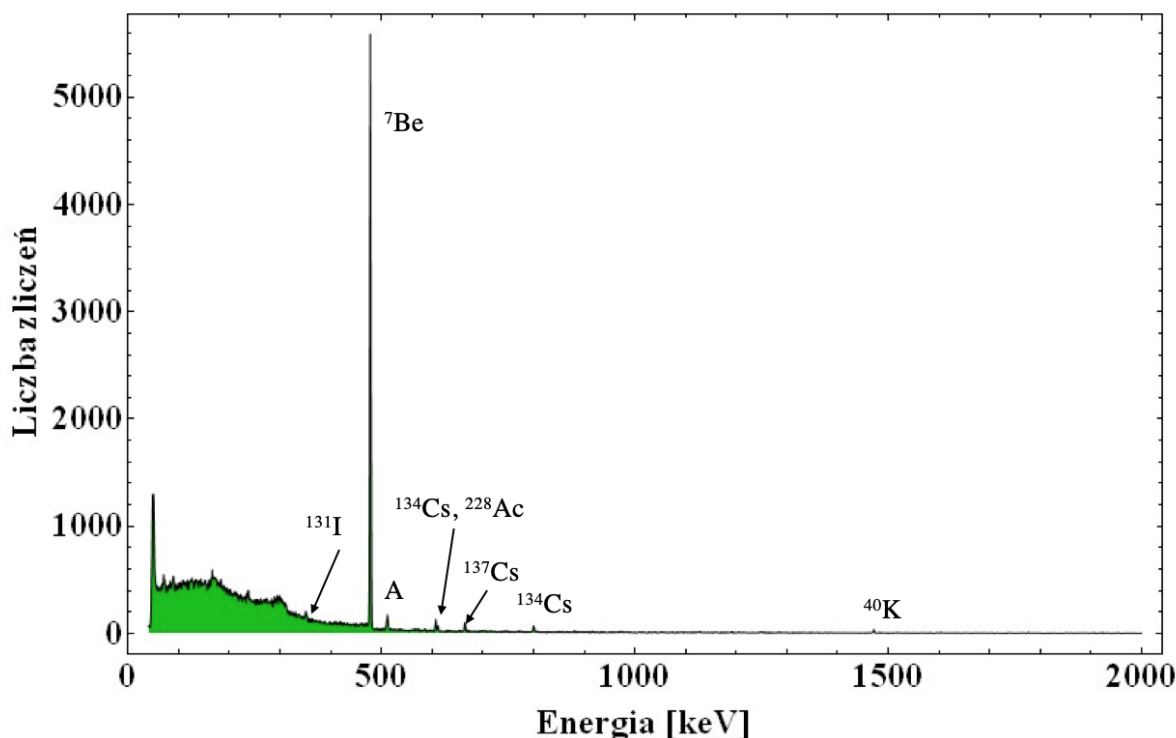
Tablica 2.32: Zestawienie podstawowych informacji dotyczących próbek całkowitego opadu atmosferycznego pobranych w Krakowie w okresie od 11.03.2011 do 31.10.2011.

Lp.	Kod próbki	Próbkowanie			V [dm ³]	HNO ₃
		start	koniec	t _p [dni]		
1	DS0311	11.03.2011	28.03.2011	17	30	-
2	DS04A11	28.03.2011	05.04.2011	8	10	-
3	DS04B11	05.04.2011	29.04.2011	24	160	-
4	DS0511	29.04.2011	30.05.2011	31	190	+
5	DS0611	30.05.2011	04.07.2011	35	155	+
6	DS0711	04.07.2011	01.08.2011	28	270	+
7	DS0811	01.08.2011	06.09.2011	36	140	+
8	DS0911	06.09.2011	03.10.2011	27	30	+
9	DS1011	03.10.2011	31.10.2011	28	18	+

t_p - czas próbkowania, V - objętość próbek, „-” - próbka bez HNO₃, „+” - próbka z HNO₃

Metodologię przygotowania materiału badawczego do pomiarów gamma - spektrometrycznych zmieniono dla trzech pierwszych próbek, ze względu na możliwość utraty ^{131}I w trakcie stosowanej procedury. W związku z tym próbki DS0311, DS04A11, DS04B11 odparowywano do małej objętości na płycie grzejnej w stalowym a później szklanym naczyniu a następnie w polietylenowym pod promiennikiem podczerwieni. W trakcie odparowywania zmieniano pH próbki przez dodanie wody amoniakalnej (pH ok.10). Wpływało to niestety niekorzystnie na objętość końcowego materiału (objętość ulegała powiększeniu) co miało istotne znaczenie w przypadku szacowania wyników pomiarów gamma - spektrometrycznych [138].

Pozostałe 6 próbek poddano rutynowym zabiegom tj. po zakończeniu próbkowania do próbki dodawano stęż. HNO_3 (ok. 100 ml na 160 dm³ próbki). Całą próbkę stopniowo odparowywano w naczyniu ze stali nierdzewnej a później w zlewce szklanej. W tym czasie pustą beczkę, w której gromadzono próbkę przemywano roztworem HNO_3 i osuszano filtrami bibułowymi. Filtry te spopieliano po wysuszeniu w piecu muflowym w temperaturze 400 °C. Odparowaną do małej objętości próbkę łączono z materiałem pozostałym po spopieleniu filtrów w naczyniu polietylenowym i ponownie odparowywano pod promiennikiem podczerwieni. Tak przygotowany materiał kierowany był do pomiarów gamma - spektrometrycznych. Z uwagi na fakt, że objętość końcowa próbek mieściła się w zakresie od 7 cm³ do 100 cm³, kalibrację wydajnościową dla każdej geometrii przygotowano używając w tym celu roztworów z oznaczonymi: ^{131}I , ^{134}Cs oraz ^{137}Cs . Wszystkie próbki zostały zmierzone przy użyciu koaksjalnego detektora HPGe (Silena SpA) o wydajności względnej 11 %. Poniżej (rys. 2.44) przedstawiono przykładowe widmo próbki całkowitego opadu atmosferycznego.



Rysunek 2.44: Widmo próbki całkowitego opadu atmosferycznego SDS04B11, czas pomiaru 102 180 s, detektor koaksjalny HPGe (Silena SpA) o względnej wydajności 11 %.

A - 511 keV anihilacja

W rozważanych próbkach zidentyfikowano sztuczne izotopy promieniotwórcze takie

jak: ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs . Stężenia aktywności oraz MDC dla znalezionych izotopów, szacowano stosując zależności odpowiednio 2.33 oraz 2.34 z pominięciem współczynnika K_p dotyczącego rozpadu izotopów w próbce w czasie jej pobierania i zastępując V powierzchnią kolektora ($D=2.28\text{ m}^2$). Czas pomiędzy poborem próbki a pomiarem liczono od środka przedziału okresu próbkowania. Wyniki przeprowadzonych analiz zostały zestawione w tab. 2.35 w rozdziale 2.4.4.

2.4.4 Wyniki analiz alfa - i gamma - spektrometrycznych

Wyniki badań prezentowanych powyżej (tab. 2.33, 2.34, 2.35) wykazały obecność antropogenicznych izotopów promieniotwórczych w powietrzu nad Krakowem. We wszystkich przebadanych komponentach atmosfery (frakcja gazowa, frakcja aerozolowa, całkowity opad atmosferyczny) udało się zidentyfikować ^{131}I . Izotop ten we frakcji gazowej zmieniał się w rozważanym okresie badań (21.03.2011 - 26.04.2011) w powietrzu w Krakowie w zakresie od $< 48\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ do $5\ 220\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ ze średnią $1\ 334\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ podczas gdy we frakcji aerozolowej ta zmienność obserwowana była w przedziale od $< 12\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ do $5\ 730\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ a średnia wynosiła $1\ 127\ \mu\text{Bqm}^{-3}$. Stężenie aktywności ^{131}I w obu frakcjach reprezentowało ten sam rząd wielkości. Maksymalne wartości zostały zarejestrowane w obu przypadkach pomiędzy 26.03.2011 a 31.03.2011. Ten sam efekt uwidocznił się także w przypadku innych izotopów tj.: ^{137}Cs , ^{136}Cs , ^{134}Cs , $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$ przy czym zakresy ich zmienności i średnie wynosiły odpowiednio: $< 9.4\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ - $436\ \mu\text{Bqm}^{-3}$, $123\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ (^{137}Cs); $< 1.0\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ - $32\ \mu\text{Bqm}^{-3}$, $21\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ (^{136}Cs), $< 4.9\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ - $461\ \mu\text{Bqm}^{-3}$, $113\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ (^{134}Cs); $2.8\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ - $124\ \mu\text{Bqm}^{-3}$, $57\ \mu\text{Bqm}^{-3}$ ($^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$). Spośród izotopów Cs wartości na tym samym poziomie zostały oszacowane dla ^{134}Cs oraz ^{137}Cs natomiast wyniki ^{136}Cs były o rząd wielkości mniejsze i powyżej MDC zostały wyznaczone głównie w okresie wspomnianego powyżej maksimum zaobserwowanego dla wszystkich zidentyfikowanych izotopów.

Tablica 2.33: Wyniki analiz frakcji gazowej i aerozolowej przygruntowej warstwy powietrza w Krakowie pobranych pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011 tj.: stężenia aktywności ^{131}I (frakcji gazowej i aerozolowej), ^{137}Cs , ^{136}Cs , ^{134}Cs , $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$, ^7Be [138].

Kod	C [μBqm^{-3}]						
	$^{131}\text{I}_{aer}$	$^{131}\text{I}_{gaz}$	^{137}Cs	^{136}Cs	^{134}Cs	$^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$	^7Be
11121	105.1 ± 4.9	135 ± 42	<9.0	<6.7	<4.9	<3.9	3810 ± 270
11122	84.3 ± 7.4	286 ± 103	<15	<11	<11	<7.7	4290 ± 310
11123	<12	<48	<9.4	<7.4	<36	<3.5	3800 ± 280
11124	840 ± 37	600 ± 170	<17	<13	16.2 ± 8.0	<8.9	3310 ± 240
11125	1570 ± 60	2040 ± 860	83 ± 11	22 ± 10	105 ± 20	44.9 ± 9.5	4680 ± 350
11131	3600 ± 200	5200 ± 1200	254 ± 27	32 ± 15	206 ± 36	109 ± 17	4980 ± 390
11132	5730 ± 350	5220 ± 340	436 ± 38	28 ± 16	461 ± 43	124 ± 39	5690 ± 440
11133	2910 ± 120	3360 ± 260	296 ± 25	24 ± 13	307 ± 28	<9.0	6040 ± 450
11134	908 ± 42	1120 ± 110	36.3 ± 5.6	<11	34.7 ± 8.0	<7.6	6330 ± 450
11135	668 ± 33	1150 ± 230	41 ± 10	<19	75 ± 22	<10	5720 ± 430
11136	718 ± 35	950 ± 150	42 ± 11	<18	54 ± 17	<9.8	4340 ± 330
11137	2151 ± 90	1520 ± 410	411 ± 30	27.4 ± 5.1	420 ± 50	41 ± 10	7500 ± 540
11141	413 ± 18	625 ± 95	45 ± 5.0	<8.2	55.5 ± 6.7	<5.7	5220 ± 370
11142	494 ± 27	510 ± 220	43 ± 15	<28	43.8 ± 13.2	<15	3760 ± 310
11143	650 ± 27	930 ± 250	45.5 ± 5.7	<10	45.1 ± 8.0	<7.0	5490 ± 390
11144	438 ± 48	680 ± 320	60 ± 15	<20	66.9 ± 26.4	<10	4840 ± 390
11145	308 ± 20	775 ± 90	82 ± 14	<20	63.6 ± 20.4	<11	3960 ± 310
11146	182 ± 16	940 ± 190	<24	<18	25.2 ± 9.6	<9.4	2410 ± 210
11147	239 ± 15	1060 ± 360	42 ± 5.5	<7.1	44.5 ± 16.1	<3.4	2740 ± 650
11151	157 ± 13	402 ± 59	39.8 ± 7.6	<9.6	37.3 ± 10.8	<4.9	3190 ± 240
11152	92.2 ± 8.3	249 ± 80	<18	<15	17.8 ± 4.7	<3.4	2420 ± 180
11153	126 ± 14	167 ± 45	28 ± 6.0	<11	31.5 ± 6.3	<6.0	4770 ± 350
11161	44.6 ± 3.1	88 ± 25	22.5 ± 2.3	2.4 ± 1.1	14.2 ± 1.7	10.6 ± 6.9	7650 ± 540
11162	11.4 ± 1.1	65 ± 12	5.32 ± 0.78	<1,0	6.48 ± 0.8	2.8 ± 2.2	6040 ± 430

wyniki podane na początek okresu próbkowania

Podobną statystykę wyników jak ^{136}Cs we frakcji aerozolowej powietrza mają również $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$. Wartości oszacowane dla tych dwóch izotopów są o dwa lub jeden rząd wielkości mniejsze od wyników ^{131}I . Dodatkowo wyniki właśnie ^{136}Cs i $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$ pokazały jak istotne są dwa okresy próbkowania poza zdefiniowanym powyżej maksimum tj. między 3.04.2011 a 4.04.2011 oraz między 18.04.2011 a 21.03.2011. W tym czasie uwidocznili się dwukrotnie ponownie wzrost stężenia aktywności całej rozważanej grupy izotopów. W pierwszym okresie rząd wielkości stężeń aktywności był na poziomie wyników z okresu wcześniejszego maksimum w drugim zaś stężenia aktywności były o rząd lub dwa rzędy wielkości mniejsze od wartości maksymalnych.

Dodatkowo w tab. 2.33 uwzględniono również ^7Be (izotop naturalny, kosmogeniczny). Wyznaczone stężenia aktywności dla tego izotopu (zakres 2 410 μBqm^{-3} - 7 650 μBqm^{-3} , średnia 4 732 μBqm^{-3}), które nie odbiegają od stężeń rejestrowanych na przestrzeni 13 lat (2003 - 2015) w Krakowie [139] mogą stanowić potwierdzenie poprawności wykonanych analiz.

Analizy aktywności, których oznaczenia wykonano w ramach prezentowanych badań tj: ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am oraz ^{242}Cm (tab. 2.34) nie wykazały odstępstw od stężeń aktywności opracowanych dla aerozolowej frakcji powietrza w latach 1990 - 2007 dla Krakowa w pracach wcześniejszych [43], [116]. Ich stężenia aktywności są od 4 do 8 rzędów wielkości

mniejsze niż stężenia zarejestrowanych emiterów kwantów gamma w powietrzu.

Tablica 2.34: Wyniki analiz frakcji gazowej i aerozolowej przygruntowej warstwy powietrza w Krakowie pobranych pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011 tj.: stężenia aktywności ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{242}Cm [138].

Kod	C [nBqm ⁻³]			
	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{242}Cm
FPK1	<0.6	5.1 ± 1.5	0.4 ± 0.3	<0.1
FPK2	0.9 ± 0.3	13.8 ± 1.9	4.3 ± 1.2	<0.3

W całkowitym opadzie atmosferycznym udało się zidentyfikować mniejszą gamę antropogenicznych izotopów promieniotwórczych niż we frakcji aerozolowej powietrza. Były to: ^{131}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs (tab. 2.35).

Tablica 2.35: Wyniki analiz całkowitego opadu atmosferycznego w Krakowie pobranego pomiędzy 11.03.2011 do 31.10.2011 tj.: stężenia aktywności ^{131}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^7Be i ^{22}Na .

Kod próbki	C [Bqm ⁻²]				
	^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs	^7Be	^{22}Na
DS0311	<840	0.016 ± 0.005	<0.026	13.04 ± 0.77	<0.015
DS04A11	3.37 ± 0.17	<0.024	0.0198 ± 0.0059	6.66 ± 0.35	<0.012
DS04B11	5.4 ± 1.7	0.146 ± 0.015	0.168 ± 0.018	130.7 ± 6.6	0.041 ± 0.011
DS0511	146 ± 83	0.175 ± 0.012	0.383 ± 0.023	212 ± 11	0.0178 ± 0.0056
DS0611	17.3 ± 8.1	0.0150 ± 0.0071	0.0617 ± 0.0089	179.3 ± 9.0	0.0210 ± 0.0061
DS0711	<180	<0.017	0.0230 ± 0.0060	249 ± 12	0.0291 ± 0.0059
DS0811	<107	<0.015	<0.015	73.0 ± 3.7	<0.013
DS0911	<83	<0.013	<0.018	5.02 ± 0.34	<0.018
DS1011	<47	<0.013	<0.011	2.19 ± 0.20	<0.013

wyniki podane na środek okresu próbkowania

Powodem takiego stanu rzeczy mógł być dłuższy czas próbkowania niż w przypadku filtrów powietrza (rozdz. 2.4.1 - 2.4.3) a także relatywnie długi proces przygotowania próbek do pomiarów gamma - spektrometrycznych. W związku z tym jądra izotopów o krótszych czasach połowicznego rozpadu i takie, których stężenia aktywności w powietrzu były mniejsze od tych, które uznano na podstawie wcześniej prezentowanych badań za markery awarii FDNPP w powietrzu w Krakowie (tab. 2.33) mogły ulec rozpadowi. Stężenie aktywności ^{131}I w opadzie atmosferycznym zmieniało się w zakresie od 3.37 Bq m^{-2} do 146 Bq m^{-2} ze średnią 43 Bq m^{-2} podczas gdy ^{137}Cs w zakresie $< 0.011 \text{ Bq m}^{-2}$ - 0.383 Bq m^{-2} ze średnią 0.131 Bq m^{-2} a dla ^{134}Cs w zakresie $< 0.013 \text{ Bq m}^{-2}$ - 0.175 Bq m^{-2} ze średnią 0.088 Bq m^{-2} . Przytoczone wyniki dla izotopów Cs są na tym samym poziomie jednak wykazują większe zróżnicowanie niż to było obserwowane dla wyników frakcji aerozolowej powietrza. Na podstawie zaprezentowanych wyników (tab. 2.35) można ustalić czas kiedy nastąpiło „oczyszczenie” atmosfery z izotopów promieniotwórczych pochodzących z FDNPP z rozdzielczością miesięczną. Ostatnie ślady ^{131}I oraz ^{134}Cs w atmosferze w Krakowie wg. prezentowanych danych były obserwowane w czerwcu 2011 r. Tak jak poprzednio w tabeli wyników związanych z FDNPP zamieszczono również wyniki dla izotopów naturalnych (kosmogenicznych) tj. ^7Be oraz ^{22}Na . Z uwagi na dość długi poddany rozważaniom okres próbkowania można dla nich zaobserwować trend związany z sezonowością tj. porami roku. Oszacowane wyniki nie odbiegają od wartości uzyskanych w trakcie badań pomiędzy 2005 r. a 2015 r. w Krakowie [140] co może być wyznacznikiem poprawności wykonanych analiz.

Omówienie wszystkich prezentowanych wyników w kontekście sytuacji globalnej na świecie po awarii FDNPP nastąpi w rozdz. 3.

Rozdział 3

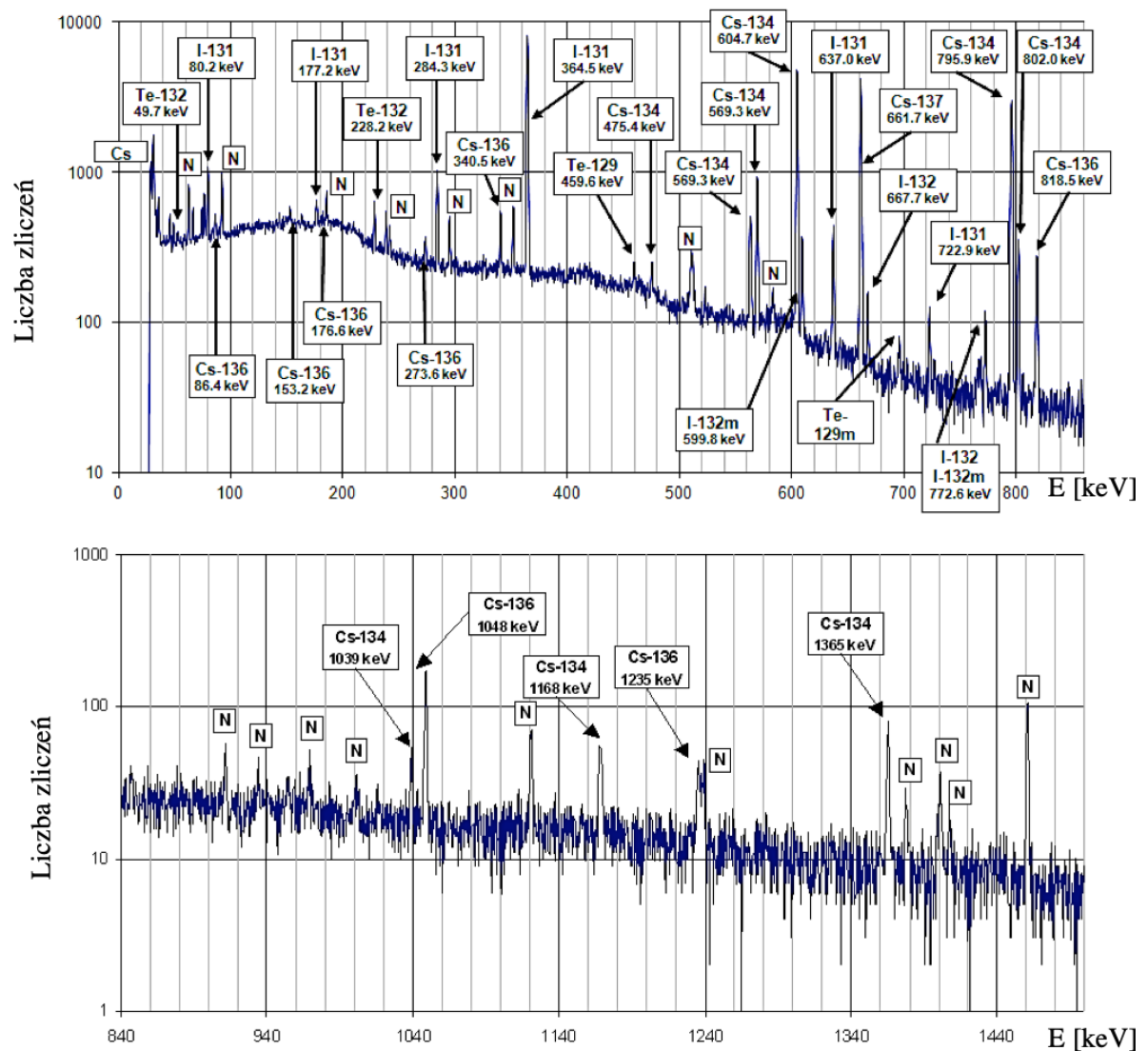
Dyskusja wyników badań

Kompozycja radionuklidów, uwolnionych w wyniku intencyjnych i/lub nieintencyjnych działań na terenie FDNPP (rozdz. 1.1.4), a zwłaszcza obecność w ekosystemach lądowym i morskim krótkożyciowych izotopów, będących sygnaturami procesów jądrowych (rys. 3.1), były potwierdzeniem skażenia środowiska do jakiego doszło w wyniku awarii jądrowej na terenie Japonii (rozdz. 1.1.5).

Transport uwolnionych izotopów promieniotwórczych w atmosferze, wraz z masami powietrza spowodował, że FDNPP zmieniła status z lokalnego źródła skażenia promieniotwórczego na źródło globalne. Izotopowe ślady awarii FDNPP były identyfikowalne w ciągu ok. dwóch tygodni na całej kuli ziemskiej (rys. 3.2) [141].

Opis konsekwencji awarii FDNPP, rozumianych jako skażenia promieniotwórcze w środowisku oraz budowanie na tej podstawie modeli teoretycznych transportu izotopów promieniotwórczych, szacowanie dawek dla populacji zamieszkującej teren Japonii etc. nie jest łatwe. Wynika to wciąż z braku jednoznacznych danych na temat paliwa jądrowego (rozdz. 1.1.4) jak i przebiegu/historii samej awarii (uwolnienie izotopów z 3 reaktorów). Poniżej zostanie przedstawiony opis stanu wiedzy i dyskusja/polemika z niektórymi przyjętymi założeniami, w tych aspektach awarii FDNPP, które zostały poddane analizie w ramach badań własnych.

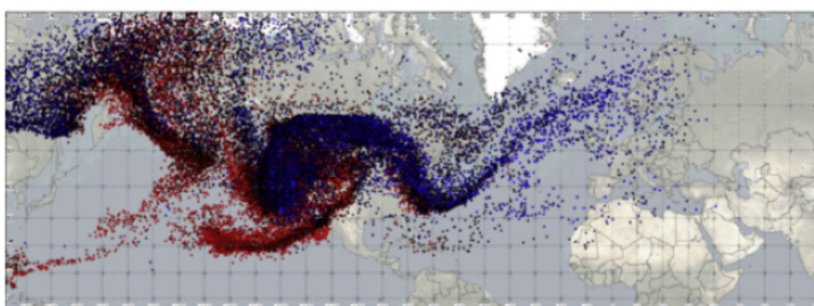
Pomimo upływu 8 lat od awarii FDNPP, wiedza na temat pewnych zagadnień dotyczących tego zdarzenia jest wciąż mocno ograniczona. Ma to swoje źródło zarówno w polityce, ekonomii, kulturze, komunikacji, wizji zagospodarowania terenów skażonych, jak i w ograniczeniach infrastrukturalnych, aparaturowych, dostępu do strefy wyłączenia, etc. Poniższe opracowanie przyczynia się do usystematyzowania wiedzy w niektórych obszarach naukowych, dodaje nowe fakty do już istniejących, a także w niektórych miejscach proponuje re-analizę istniejących w literaturze baz danych, w nieco innym kontekście niż to zostało zaplanowane przez ich autorów.



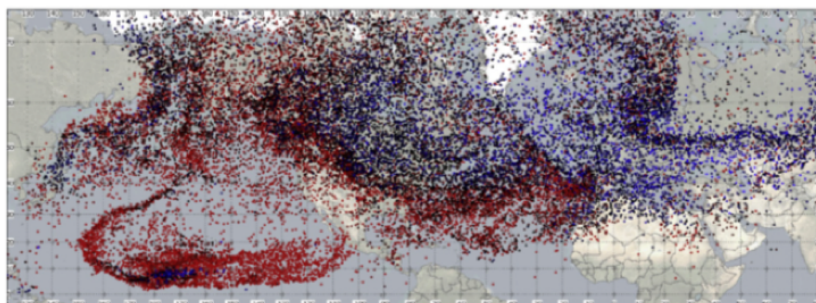
Rysunek 3.1: Widmo całkowitego opadu atmosferycznego zdeponowanego na kurtce osoby ekspozowanej na deszcz w Tōkiō w marcu 2011 r., data pomiaru 5.04.2011, czas pomiaru 70 502 s, detektor X SCC - koaksjalny HPGē typu PopTop (ORTEC, GMX 30190) o względnej wydajności 30 % [138].



13/3/2011 at 00:00 UTC



20/3/2011 at 12:00 UTC



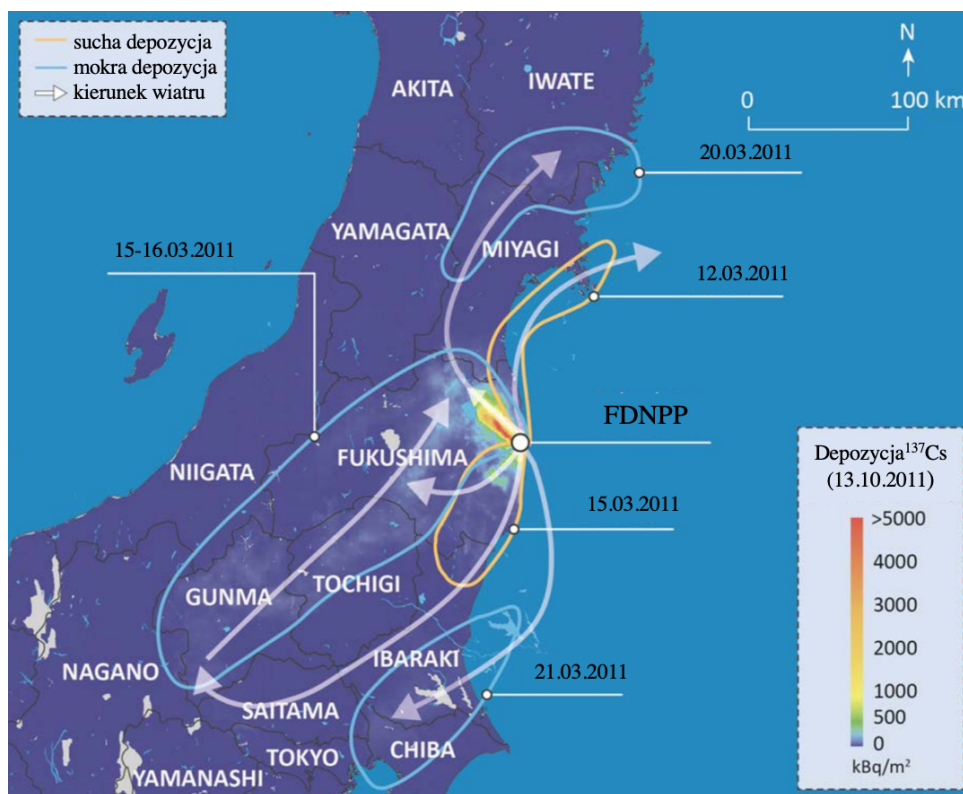
26/3/2011 at 18:00 UTC

Rysunek 3.2: Wyniki symulacji trajektorii mas powietrza między 13.03.2011 a 26.03.2011, mających swój początek nad obszarem FDNPP i uzyskane przy użyciu modelu dyspersji Langrange'a [6].

kolor czerwony - cząstki pomiędzy poziomem ziemi a 3 km nad powierzchnią ziemi, czarny/ciemny niebieski - cząstki pomiędzy 3 km a 6 km nad powierzchnią ziemi, jasny niebieski - cząstki powyżej 6 km nad powierzchnią ziemi

3.1 Izotopowe ślady awarii FDNPP na terenie Japonii

Rozszczelnienia w obudowach bezpieczeństwa bloków nr. 1, 2 i 3 FDNPP (odpowiednio 12.03.2011, 15.03.2011 i 14.03.2011) były głównymi, choć nie jedynymi (rozd. 1.1.3), drogami uwolnienia izotopów promieniotwórczych do środowiska. Jako pierwsze zostały wyemitowane gazy szlachetne (np.: ^{85}Kr , ^{133}Xe , rozdz. 1.1.4), które uległy „rozcieńczeniu” w atmosferze. Ponieważ rozszczelnienie prętów paliwowych nastąpiło w wyniku przegrzania rdzeni reaktorów i ich stopienia, produkty rozszczepienia o średniej lub niskiej lotności, były uwolnione w niewielkich ilościach (rozd. 1.1.4) tj. inaczej niż w przypadku awarii w Czarnobylu (rozd. 1.3.1). Powstałe aerozole, w wyniku procesów fizycznych i chemicznych uległy depozycji w środowisku lądowym i morskim. Rozmieszczenie rejonów Japonii, gdzie nastąpiła depozycja uwolnionych z FDNPP izotopów promieniotwórczych, przedstawiono na rys. 3.3. Ich położenie było uwarunkowane sprzężeniem chronologii wydarzeń w FDNPP (wybuchów wodoru, rozszczelnienia obudowy bezpieczeństwa, etc., rozdz. 1.1.3) z warunkami meteorologicznymi (kierunek wiatru, opady deszczu, etc.) a także ukształtowaniem terenu (rozd. 1.1.1).



Rysunek 3.3: Lokalizacja rejonów Japonii, na których nastąpiła depozycja izotopów promieniotwórczych z FDNPP wraz z rozkładem depozycji ^{137}Cs na dzień 13.10.2011[13].

3.1.1 Skazienia promieniotwórcze wybranych elementów ekosystemu lądowego

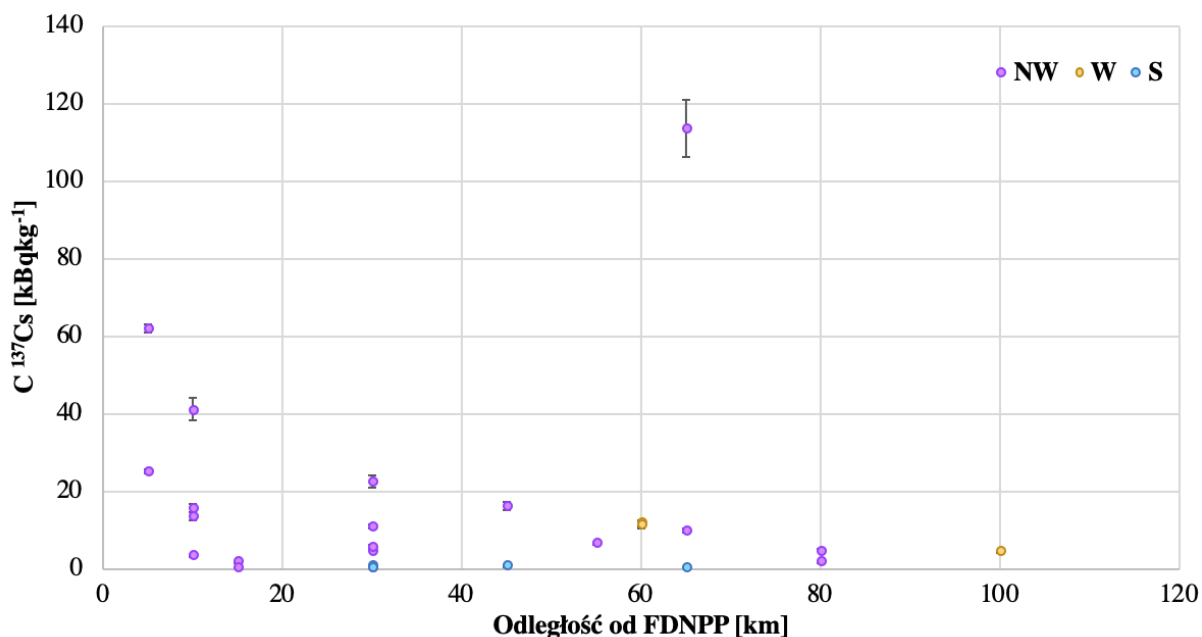
Cez

Depozycja izotopów Cs w środowisku lądowym, nie była geograficznie izotropowa. Przekonano się o tym dość szybko, na podstawie pomiarów „skanujących” teren do 80 km od FDNPP (rozdz. 1.1.5). Pokazały one, że rozkład mocy dawki (pochodzącej głównie od ^{134}Cs , ^{137}Cs oraz ^{131}I , $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$, tab. 1.3) prezentuje charakterystyczny kształt (profil depozycji), a wartości maksymalne układają się wzdłuż kierunku północno - zachodniego od FDNPP (rys. 1.8). Taki wyraźny trend był związany z koincydencją rozszczelnienia obudowy bezpieczeństwa bloku nr. 2 dnia 15.03.2011 w godzinach porannych (rozdz. 1.1.3), zmiany kierunku wiatru z południowo - zachodniego na północno - zachodni oraz opadu deszczu, który wystąpił tego samego dnia w godzinach popołudniowych [13].

Z uwagi na fakt, że ^{137}Cs ma dłuższy czas połowicznego rozpadu niż ^{134}Cs oraz jest on emitentem promieniowania gamma mono-energetycznego (661.7 keV, tab. 1.8), to na nim opierać się będzie cała poniższa dyskusja.

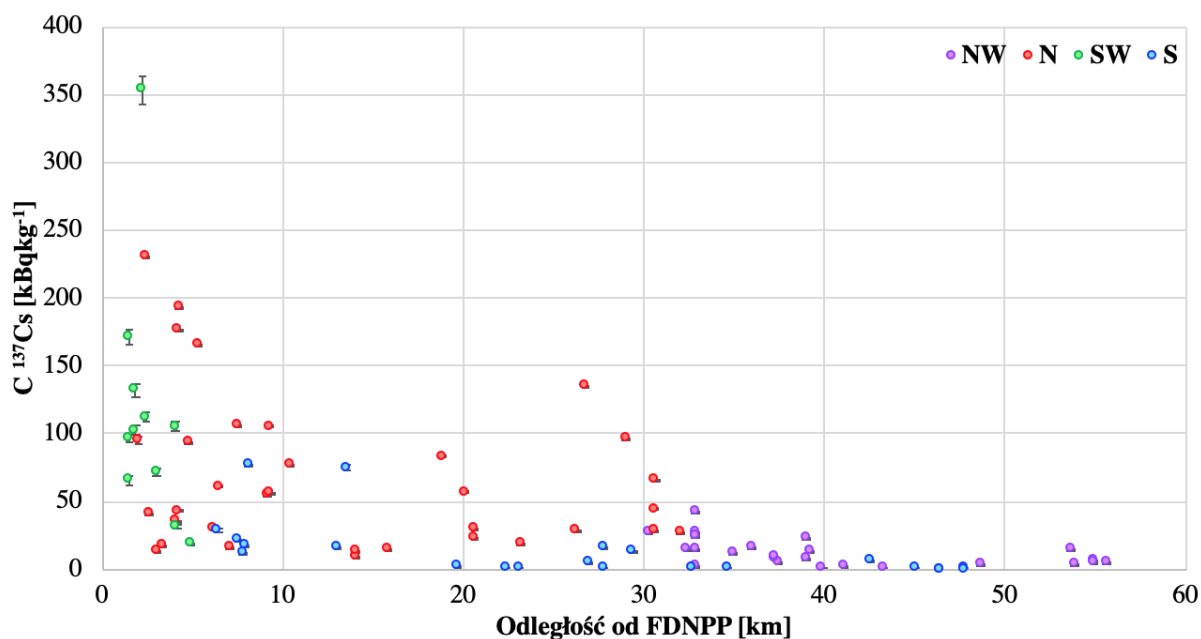
Badania próbek gleby pobranych na terenie prefektury Fukushima (rozdz. 2.1), choć liczba ich nie była duża ($n=26$) to jednak oddają anizotropowość rozkładu powstałego skażenia terenu. Stężenia aktywności ^{137}Cs , w próbkach pobranych z terenów położonych na południe od FDNPP ($n=4$, tab. 2.1, 2.8), mieszczą się w zakresie od 460 Bq kg^{-1} do 663 Bq kg^{-1} podczas gdy ta sama wielkość dla próbek z obszarów usytuowanych na zachód i północny zachód od FDNPP, dochodzi do $113.2 \pm 7.4 \text{ kBq kg}^{-1}$. Dla tej drugiej grupy próbek, stężenie aktywności ^{137}Cs jest funkcją odległości od elektrowni (rys. 3.4). Warto jednak zwrócić uwagę na fakt, że spośród próbek gleby, to ta pobrana 65 km od elektrowni (FS3) ma maksymalne stężenie aktywności, wyznaczone w prowadzonych badaniach. Jest to kolejnym dowodem niejednorodności rozkładu depozycji Cs w środowisku lądowym a także dowodem na istnienie tzw. „hot spotów”, rozumianych jako wybrane miejsca/punkty o większej aktywności izotopów /stężeniu aktywności izotopów /mocy dawki niż na obszarze sąsiadującym z nim.

Dla potwierdzenia powyższych wniosków przygotowano również wykres zależności stężenia aktywności ^{137}Cs od odległości (rys. 3.5), na podstawie danych zgromadzonych w pracy Yamamoto et. al. (2014) [105], dla próbek gleby pobranych w latach 2011 - 2013, z obszarów wokół FDNPP, w odległości od 1.5 km do 56 km (wyniki zostały przeliczone na datę 11.03.2011). Na jego podstawie, można łatwo zaobserwować, że różnice w wartościach rozważanych wielkości są związane z orientacją geograficzną względem FDNPP. Wyniki dla kierunku południowo - zachodniego (SW) dotyczą okolic miasta Ōkuma, znajdującego się najbliżej elektrowni, co miało niebagatelny wpływ na depozycję m.in. izotopów Cs na tym terenie. Wartości te gwałtownie maleją wraz z odległością i na przestrzeni ok. 4 km różnią się o rząd wielkości. Nieco inaczej jest dla kierunku północnego (N), do odległości ok. 7.5 km. Przedstawione wyniki związane są z terenem miasta Futaba (rozdz. 1.1.1). Choć dla tego miejsca poziom stężenia aktywności ^{137}Cs jest równie wysoki jak dla Ōkuma, to jednak jego gradacja związana z odległością od FDNPP jest zdecydowanie mniejsza (na przestrzeni 5 km wyniki różnią się o czynnik 2). Taką dysproporcję, pomiędzy wynikami uzyskanymi dla okolic dwóch miast oddalonych o ok. 5 km od siebie, przypisać można warunkom atmosferycznym tj. większej częstotliwości występowania wiatrów w kierunku północnym lub północno - zachodnim w trakcie awarii w FDNPP. Podkreślić należy, że na taką strukturę zbioru wyników, wpływ miały również wysokie efektywności procesów fizycznych i chemicznych w wyniku, których



Rysunek 3.4: Rozkład stężenia aktywności ^{137}Cs w próbkach gleby pobranych z obszaru prefektury Fukushima w funkcji odległości od FDNPP.

W - zachód, S - południe, NW - północny zachód; odległość od elektrowni podana z dokładnością do 5 km



Rysunek 3.5: Rozkład stężenia aktywności ^{137}Cs w próbkach gleby pobranych z obszaru prefektury Fukushima w funkcji odległości od FDNPP (na podstawie [105]).

S - południe, SW - południowy zachód, NW - północny zachód, N - północ

dochodziło do depozycji izotopów promieniotwórczych (depozycja sucha, depozycja mokra powiązane z krótkotrwałymi, lokalnymi zmianami kierunków wiatru), a które silnie zależały od zmiennej zasięgu.

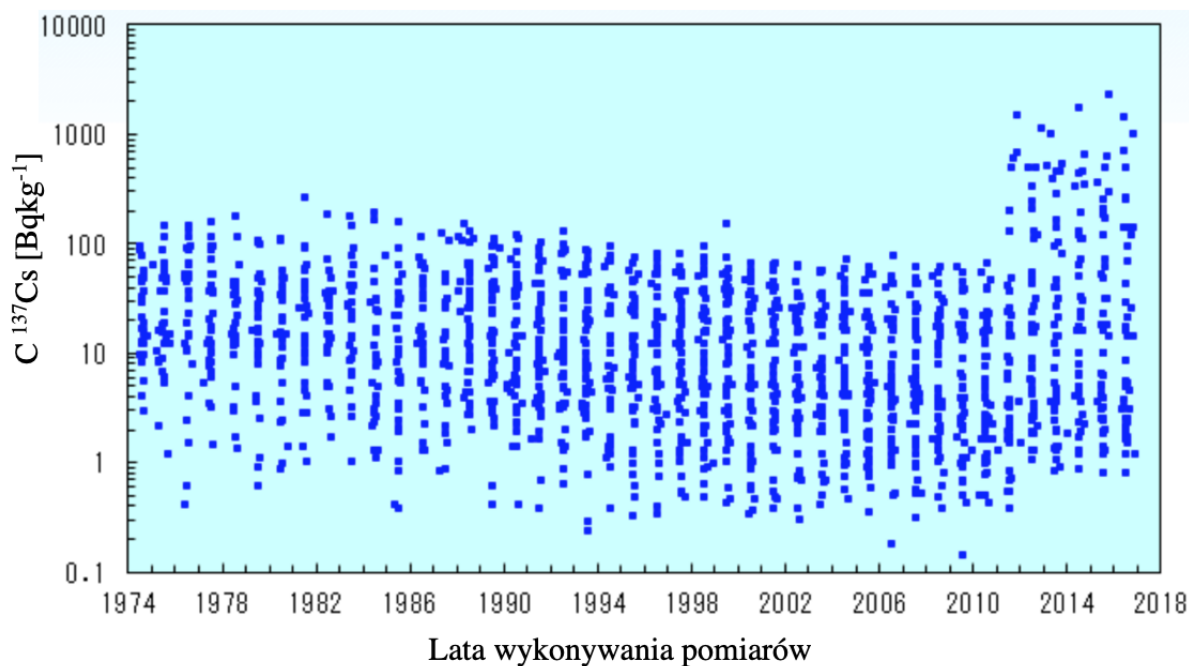
Profil rozkładu stężenia aktywności ^{137}Cs w kierunku południowym (S), ma ścisły

związek z ukształtowaniem terenu (rozdz. 1.1.1). Mniej więcej 15 km od FDNPP, kończy się wąska równina Hamadōri ograniczona terenem wyżynnym i górami Abukuma od zachodu. Znajduje to swoje odbicie w wynikach, które dla odległości większej niż 15 km gwałtownie maleją o rząd wielkości (rys. 3.5).

Inaczej przedstawia się obraz zbioru danych dla kierunku północnego (N) i północno - zachodniego (NW), choć i tutaj ukształtowanie terenu ma bardzo duże znaczenie i stanowi klucz do prawidłowej interpretacji. Wyniki przypisane kierunkowi północnemu od FDNPP, związane są z miejscami (Minamisōma, Namie) usytuowanymi na równinie Hamadōri a więc tak jak w przypadku rozważanym powyżej, niewielka szorstkość terenu umożliwiła większy zasięg, utworzonym po emisji z rdzeni reaktorów aerozolem promieniotwórczym. Natomiast maksima pojawiające się ok. 18 km - 20 km oraz 26 km - 30 km mogą mieć związek z korelacją chronologii wydarzeń w FDNPP i warunków atmosferycznych. Dane z kierunku północno - zachodniego (okolice miejscowości Iitate) zostały opracowane na podstawie próbek pobranych pomiędzy ok. 30 km a 56 km. Przedstawione stężenia aktywności są zdecydowanie mniejsze niż dla kierunku północnego, a w całym zbiorze można wyróżnić dwa niewielkie maksima ok. 32 km i 39 km. Taka struktura danych ma również swoje korzenie w ukształtowaniu terenu. Miejscowość Iitate położona jest wśród gór Abukuma, które stanowiły fizyczną przeszkodę dla transportowanych przez masy powietrza aerozoli pochodzących z FDNPP. Miejsce pobrania próbki (np.: dolina lub stok, stok wschodni lub zachodni) miało tu decydujący wpływ na wartość otrzymanego wyniku.

O ile ^{134}Cs jest ewidentnym śladem awarii FDNPP (czas połowicznego zaniku wynosi 2.1 lat) a jego wyniki nie potrzebują żadnej korekty związanej z innymi źródłami promieniotwórczymi w środowisku, zdeponowanymi przed awarią w FDNPP (rozdz. 1.3), o tyle ^{137}Cs takiej korekty wymaga. Badania prowadzone na terenie całej Japonii w latach 1974 - 2017, w ramach których analizowano m.in. ^{137}Cs w powierzchniowej warstwie gleby (do 5 cm głębokości) pokazały, że głównym źródłem tego izotopu do 2011 r. były testy broni jądowej (rys. 3.6, [142]). Poziom stężenia aktywności ^{137}C , mieszczący się między ok. 2 Bq kg⁻¹ a 200 Bq kg⁻¹ w roku 1974 (w zależności od położenia miejsca poboru próbek na terenie Japonii), sukcesywnie malał do 2010 r., kiedy to osiągnął wartości z przedziału dziesiątych części Bq kg⁻¹ do ok. 100 Bq kg⁻¹. Na prezentowanym wykresie praktycznie brak widocznego wpływu awarii w Czarnobylu (1986 r.) na obserwowany trend (rys. 3.6). Ostatni wynik pomiarów ^{137}Cs w próbkach gleby z 2010 r. dla prefektury Fukushima wynosił 17 ± 0.4 Bq kg⁻¹ [143], co stanowi ok. 4 % najmniejszego wyniku oszacowanego w ramach badań własnych, dla południowej części prefektury Fukushima. W związku z tym można wyciągnąć wniosek, że dla prezentowanych wyników badań własnych, poprawka dla ^{137}Cs uwzględniająca „tło” tj. stężenie tego izotopu obserwowane w powierzchniowej warstwie gleby przed 2011 r., jest relatywnie mała (w granicach niepewności wyników) i może być pomijana.

Próbki ściółki leśnej zgromadzone na terenie położonym w odległości ok. 10 km - 30 km w kierunku północno - zachodnim od FDNPP, w okolicach miasta Namie, pokazują duże zróżnicowanie w stężeniu aktywności ^{137}Cs mieszczące się w przedziale od 112.5 kBq kg⁻¹ do 649 kBq kg⁻¹ masy suchej (rozdz. 2.1) lub od 160 kBq kg⁻¹ do 974 kBq kg⁻¹ masy spopielennej. Pomimo, że jest to próba statystycznie mała (n=4), to na podstawie otrzymanych wyników można stwierdzić, że poziom stężeń aktywności ^{137}Cs w analizowanych próbkach był wyższy niż dla gleby oraz widoczny jest brak zależności pomiędzy odległością od FDNPP a wielkością oszacowanego wyniku (najmniejsza wartość została wyznaczona dla odległości 10 km zaś największa dla 30 km, tab. 2.8). Pierwszy fakt można wiązać z większą zawartością materii



Rysunek 3.6: Stężenie ^{137}Cs w powierzchniowej warstwie gleby (do głębokości 5 cm) na terenie Japonii w latach 1974 - 2018 [142].

organicznej w ściółce leśnej niż w glebie (tab. 2.8), zaś drugi jest wynikiem ukształtowania terenu i warunków meteorologicznych warunkujących depozycję m.in. Cs. Należy pamiętać, że ta grupa próbek została pobrana w 2015 r. Miejsce poboru próbek w odległości ok. 10 km od FDNPP zlokalizowane było u podnóża gór, które stanowiły fizyczną barierę dla transportu aerozoli atmosferycznych, zaś kolejne trzy punkty, położone były pomiędzy wzgórzami obszaru Abukuma. Z uwagi na fakt, że składową ściółki leśnej są m. in. igły, liście, fragmenty kory (rozd. 2.1), które zanim opadną biorą udział w oczyszczaniu atmosfery z aerozoli atmosferycznych, to po 4 latach od awarii, to one mogą wносить istotny wkład do prezentowanych wyników. Posiłkując się dostępnym zbiorem wyników dla próbek ściółki leśnej ($n=34$, odległość od 2 km do 34.5 km) nawiązującym do omawianych wcześniej próbek gleby i tak jak poprzednio pochodzącym z pracy Yamamoto et. al. (2014) [105] można stwierdzić, że wyciągnięte powyżej wnioski, pozostają prawdziwe. Największe wartości dla tego zbioru danych zarejestrowano dla okolic miasta Namie (kierunek północno - zachodni) dla odległości ok. 30 km (maksymalna wartość ok. 15 MBq kg^{-1} masy spopielonej, próbki pobrane w 2012 r.). Dla tego obszaru wyraźny jest trend związany z odległością tj.: im większa odległość tym większe stężenie aktywności ^{137}Cs . Jest to zależność odwrotna do tej znalezionej dla wszystkich pozostałych, podlegających rozważaniom miejsc (Minamisōma, Iitate, Futaba, Ōkuma, czy tereny na południe od FDNPP) a jej uzasadnieniem jest koincydencja uwolnienia izotopów promieniotwórczych wraz z depozycją związaną z opadami deszczu (15.03.2011 r.).

Najciekawszą, pod względem poznawczym okazała się być grupa materiału badawczego zakwalifikowana w niniejszym opracowaniu jako materiał naniesiony (rozd. 2.1). Zawartość materii organicznej dla tego zbioru (wartość maksymalna 21 %, mediana 13 %), odpowiadała zakresowi wyznaczonemu dla gleby (wartość maksymalna 22 %, mediana 10 %) więc nie był to czynnik różnicujący te dwa rodzaje próbek, dla których opracowane wyniki ^{137}Cs różniły się znacząco. Wartości stężenia aktywności ^{137}Cs dla materiału naniesionego ($n=5$)

zawierały się w przedziale od 0.32 MBq kg^{-1} do 5.34 MBq kg^{-1} . Próbki te, podobnie jak ściółka leśna, zostały pobrane w 2015 r. a miejsca, w których nastąpiło ich pobranie miały doskonałe cechy miejsc, gdzie mogło następować pułapkowanie i akumulacja materiału naniesionego (miejsca pod rynnami, rowy systemów odwadniających drogi, ubytki w nawierzchni dróg lokalnych, rozdz. 2.1), a co za tym idzie, gromadzenie wyraźnych śladów awarii FDNPP, manifestujących się poprzez stężenia aktywności lub stosunki izotopowe odbiegające w znaczny sposób od tych spotykanych w innym materiale badawczym. W kontekście opublikowanych danych, wyniki otrzymane w ramach badań własnych nie odbiegają od wyników literaturowych [104]–[106]. Największa wartość stężenia aktywności ^{137}Cs dla materiału naniesionego, została wyznaczona dla próbki pobranej w 2012 r. w okolicach miasta Futaba (w kierunku północnym, w odległości 4.28 km od FDNPP) i wynosiła ona ok. 70 MBq kg^{-1} [105]. Poza tym, dla tego materiału badawczego, zgromadzonego z obszarów we wszystkich kierunkach geograficznych wokół FDNPP, dla stężenia aktywności ^{137}Cs dał się zauważyć trend malejący wraz z odległością od FDNPP. Warto podkreślić, że próbki materiału naniesionego przedstawione w ramach niniejszego opracowania są ostatnimi pobranymi (2015 r.) tego rodzaju próbkami, których wyniki są publikowane i stanowią dowód, że mimo upływu czasu i akcji dekontaminacji wciąż w środowisku istnieją „hot spoty”, w których gromadzony materiał, może mieć wysoką aktywność.

Nie udało się niestety, dla całej rozważanej grupy próbek ($n=35$), wykazać zależności pomiędzy mocą dawki zmierzoną w miejscu poboru próbki (tab. 2.1) a sumą aktywności ^{134}Cs i ^{137}Cs ($R^2=0.13$) przeliczonymi na dzień poboru próbki (wyniki w tab. 2.8 podane na dzień 11.03.2011). Związane jest to z brakiem informacji o stężeniu aktywności izotopów I (badania przeprowadzone 4 - 5 lat po awarii FDNPP), które oprócz izotopów Cs stanowią główną komponentę skażenia terenu (tab. 1.3), a ich różny wkład zmieniający się z czasem (próbki pobierane w latach 2011 - 2015) może zaburzać obraz istniejących zależności. Jedyne wyniki dla próbek ściółki leśnej pobranych w 2015 r. i gleby, pobranych w listopadzie 2011 r. wykazały dość dobre korelacje, dla których współczynnik determinacji R^2 wynosił odpowiednio 0.91 oraz 0.76.

Przeprowadzone badania również nie wykazały dobrze zdefiniowanych zależności pomiędzy zawartością materii organicznej a stężeniem aktywności ^{137}Cs , dla każdej z rozważanych grup próbek.

Stosunki aktywności izotopów Cs tj.: ^{134}Cs i ^{137}Cs w opracowanej grupie wyników są bliskie 1 i właśnie wartość na tym poziomie szczegółowości dość dobrze charakteryzuje źródło izotopów Cs, którym jest FDNPP. Podawanie bardziej szczegółowych danych lub wyciąganie na ich podstawie wniosków jest dość ryzykowne. Powodem tej sytuacji jest różna metodyka wyznaczania aktywności ^{134}Cs , który jest izotopem multi-energetycznym (tab. 1.8). W literaturze funkcjonują zarówno wyniki z wprowadzoną poprawką na sumowanie pików, wyniki bez poprawki na sumowanie, uzyskane w oparciu o jedną z linii widmowych, wyniki bez poprawki na sumowanie w oparciu o średnią z kilku linii widmowych, etc. Rozrzut tych wyników jest zależny od jakości detektora, przy użyciu którego wykonywane były badania, a także aktywności mierzonej próbki. Lepsza jakość detektora (wyższa efektywność względna) oraz większa aktywność próbki wpływa na większą poprawkę związaną z sumowaniem pików, zaś brak jej uwzględnienia na niedoszacowanie aktywności ^{134}Cs i zaniżenie stosunku aktywności ^{134}Cs i ^{137}Cs .

Pluton

Z uwagi na fakt, że izotopy Pu są głównie emiterami promieniowania alfa (np.: ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , tab. 1.10) lub beta (^{241}Pu , tab. 1.10, nie będzie omawiany w ramach opracowania, informacje na jego temat w środowisku lądowym, po awarii FDNPP, można znaleźć m. in. w pracach [11], [144], [145]) rzadziej podlegają opracowaniom związanym z dystrybucją izotopów promieniotwórczych w środowisku po awarii FDNPP (konieczność zastosowania procedur radiochemicznych) niż izotopy gamma - promieniotwórcze.

Wyniki dla izotopów Pu, otrzymane w ramach badań prezentowanych w niniejszym opracowaniu, zostały zestawione w tab. 2.8. W przypadku ^{238}Pu , dla 12 próbek spośród całego zbioru (były to wyłącznie próbki gleby) otrzymano wyniki mniejsze niż MDC. Stężenie aktywności dla próbek gleby zmieniało się w przedziale pomiędzy $< 0.0033 \text{ Bq kg}^{-1}$ a $0.0922 \text{ Bq kg}^{-1}$ z medianą $0.0063 \text{ Bq kg}^{-1}$. W tej grupie próbek nie zaobserwowano korelacji pomiędzy odległością miejsc poboru próbek od FDNPP a wynikami stężeń ^{238}Pu . Warto zwrócić uwagę na dwie próbki tj. FS7_1 oraz FS7_4, które były pobrane w odległości 1 m od siebie i ok. 5 km od FDNPP. Stężenie aktywności ^{238}Pu dla pierwszej z nich to $0.0922 \pm 0.0086 \text{ Bq kg}^{-1}$ podczas gdy dla drugiej to $0.0087 \pm 0.0026 \text{ Bq kg}^{-1}$. Różnica rzędu wielkości pomiędzy wartościami uzyskanymi dla próbek pobranych tak blisko siebie jest pierwszym sygnałem o nieizotropowej depozycji Pu w środowisku. Wyniki dla próbek ściółki leśnej i materiału naniesionego zmieniały się w przedziałach odpowiednio od $0.0184 \text{ Bq kg}^{-1}$ do $0.1278 \text{ Bq kg}^{-1}$ masy suchej lub od $0.0339 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.192 Bq kg^{-1} masy spopielonej oraz od $0.0474 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.545 Bq kg^{-1} . Zgodnie z przewidywaniami (na podstawie profilu wyników izotopów Cs) największe stężenia aktywności ^{238}Pu zostały wyznaczone dla próbek materiału naniesionego, zaś najmniejsze dla próbek powierzchniowej warstwy gleby, pobranych w 2011 r., pomiędzy 40 km a 100 km od FDNPP. Należy dodać, że żaden wynik (stężenie aktywności wyznaczone dla masy suchej) nie przekroczył górnej granicy zakresu stężenia aktywności ^{238}Pu oszacowanej dla gleb w Japonii, na podstawie badań wykonywanych w latach 1978 - 2008 (czyli przed awarią FDNPP), opracowanych przez MEXT i użytych w raportach TEPCO [117]. Granica ta wynosiła 0.15 Bq kg^{-1} .

Podobnie kształtowały się profile wyników stężenia aktywności $(^{239+240})\text{Pu}$. Największe zróżnicowanie zaobserwowano w zbiorze wyników dla próbek gleby, który rozciągał się od $0.0044 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.443 Bq kg^{-1} z medianą 0.103 Bq kg^{-1} . Na podstawie całego zestawu danych (tab. 2.8) łatwo zauważyć, że wyniki $(^{239+240})\text{Pu}$ dla tego materiału badawczego były większe niż ^{238}Pu . Najbardziej spójne w kontekście $(^{239+240})\text{Pu}$ okazały się być próbki ściółki leśnej. Wartości oszacowane dla nich mieściły się w przedziale od $0.0638 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.209 Bq kg^{-1} masy suchej lub od $0.0685 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.296 Bq kg^{-1} masy spopielonej i tylko dla jednej próbki tj. FUK13 wartość ^{238}Pu była większa niż $(^{239+240})\text{Pu}$. Zupełnie inaczej przedstawia się sytuacja dla materiału naniesionego. Wszystkie wyniki dla $(^{239+240})\text{Pu}$ zmieniające się w przedziale od $0.0398 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.339 Bq kg^{-1} były mniejsze od wyników ^{238}Pu dla tej serii próbek. Tak jak w przypadku ^{238}Pu , żaden oszacowany na podstawie badań wynik, dla całego zestawu próbek, nie osiągnął górnej granicy stężenia aktywności $(^{239+240})\text{Pu}$ dla gleb w Japonii tj. 4.5 Bq kg^{-1} [117].

a) Stosunki aktywności ^{238}Pu i $(^{239+240})\text{Pu}$

Jednym z najciekawszych wyników jakie może dostarczyć analiza izotopowa, jest zidentyfikowanie źródła pochodzenia rozważanych izotopów, poprzez badanie ich stosunków ak-

tywności lub stosunków mas. W niniejszym opracowaniu rzecz dotyczy stosunku aktywności ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$. W przypadku rozważanych próbek gleby, stosunki te mieściły się w zakresie od 0.030 do 0.35 ze średnią 0.10, dla próbek ściółki leśnej w przedziale od 0.268 do 1.14 ze średnią 0.85 oraz dla materiału naniesionego od 1.19 do 1.86 ze średnią 1.59. Taka struktura otrzymanych wartości wskazuje na pewną zależność pomiędzy rozważanymi stosunkami a rodzajem próbki. Z uwagi na to, że nie znaleziono korelacji pomiędzy wyznaczonymi wartościami stosunków aktywności a zawartością materii organicznej (tab. 2.8) należy domniemywać, że zaobserwowaną powyżej zależność, należy rozumieć nie w kontekście rodzaju materiału ale procesów fizycznych i chemicznych odpowiedzialnych za deponowanie radionuklidów w danym materiale. W przypadku gleby jest to depozycja sucha i mokra, w przypadku ściółki leśnej również depozycja sucha i mokra, z tym że depozycja sucha „wzmocniona” poprzez aktywny udział składowych tego materiału badawczego (liści, igieł, kory, etc.) w usuwaniu aerozoli z atmosfery, podczas gdy dla materiału naniesionego, głównym procesem jest akumulacja na niewielkiej powierzchni przenoszonych wraz z wodą lub wiatrem aerozoli. Otrzymane wyniki stosunków aktywności izotopów Pu, mieszczą się w zakresach wyznaczonych przez istniejące dane literaturowe, które zostały zebrane w tab. 3.1.

Tablica 3.1: Zestawienie wyników stosunków aktywności ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ w próbkach gleby, ściółki leśnej i materiału naniesionego pobranych na obszarze prefektury Fukushima.

Rodzaj próbki	Teren poboru próbki	$^{238}\text{Pu}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$	Referencje
gleba	Iitate	0.11 – 1.324	Imanaka et al. (2012) [146]
	Teren poza 20 - km strefą wyłączenia	0.028 – 0.034	Yamamoto et al. (2012) [147]
	Iitate	0.088 – 1.324	
	Ōkuma	0.023 – 0.103	
		0.030 – 2.5	MEXT (2012) [148]
		0.333 – 2.24	UNCEAR (2013) [149]
		0.859 – 1.62	Yang et al. (2017) [150]
	Minamisōma	0.043 – 0.63	Yamamoto et al. (2014) [105]
ściółka leśna	Iitate	0.030 – 0.19	
	Namie	0.035 – 1.19	
	Futaba	0.06 – 1.15	
	Ōkuma	0.033 – 1.06	
	Południe*	0.024 – 0.76	
	Minamisōma	0.57 – 1.57	Yamamoto et al. (2014) [105]
	Iitate	1.53 – 2.26	
	Namie	0.73 – 2.63	
materiał naniesiony	Futaba	0.51 – 2.87	
	Ōkuma	0.58 – 3.19	
	Południe*	0.26 – 1.17	
		1.62 – 2.30	Yamamoto et al. (2014) [106]
		1.37 – 2.34	Yamamoto et al. (2014) [106]
	Futaba, Iitate, Minamisōma, Namie	1.64 – 2.64	Sakaguchi et al. (2014) [104]
	Minamisōma	0.71 – 2.47	Yamamoto et al. (2014) [105]
	Iitate	1.37 – 2.40	
Namie	0.67 – 2.41		
Futaba	0.04 – 2.95		
Ōkuma	0.56 – 2.34		
Południe*	0.07 – 2.52		

* - obszar położony na południe od FDNPP

Dla powierzchniowej warstwy gleby, stosunki aktywności Pu zmieniają się w przedziałach od 0.023 do 2.5, przy czym najmniejsza wartość została wyznaczona dla Ōkuma, miasta położonego na południowy zachód od FDNPP (FDNPP leży na granicy tego miasta, rozdz. 1.1.1) zaś największa dla obszaru położonego pomiędzy górami, w kierunku północno - zachodnim od FDNPP. Wyniki dla ściółki leśnej oscylowały pomiędzy 0.26 a 3.19. Wartość

dolnej granicy przedziału została wyznaczona dla próbki z terenu położonego na południe od FDNPP, zaś górna granica jest wynikiem pochodzącym z obszaru miasta Ōkuma. W przypadku materiału naniesionego, przedział wyznaczony przez dane literaturowe był bardzo szeroki w porównaniu z poprzednio omówionymi i zaczynał się od wartości 0.04 a kończył na 2.95. Obie wartości zostały oszacowane dla próbek pochodzących z obszaru miasta Futaba tj. miasta położonego na północ od FDNPP (FDNPP jest zlokalizowane na granicy tego miasta, rozdz. 1.1.1).

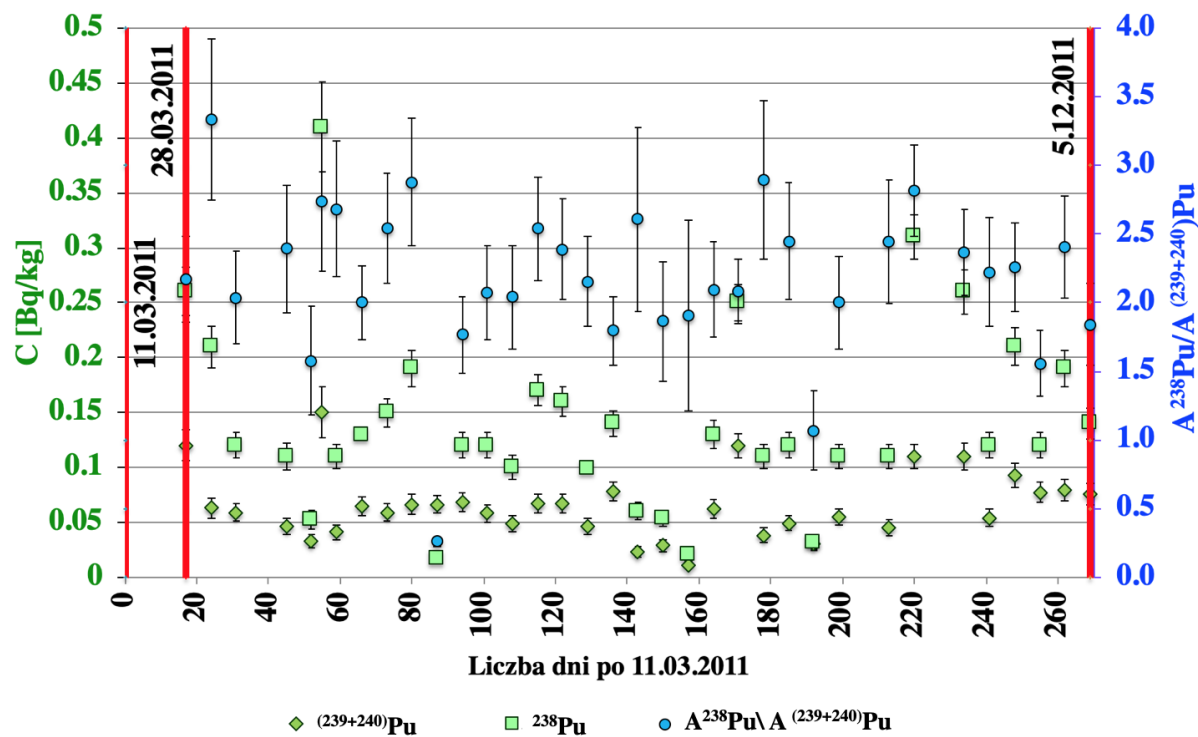
Nadal jednak pozostaje pytanie, czego powinniśmy się spodziewać jeśli chodzi o stosunki aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$, i jak należy interpretować otrzymane wyniki.

W rozdz. 1.3.1 zostały opisane antropogeniczne źródła izotopów promieniotwórczych, które miały lub z dużym prawdopodobieństwem mogły mieć wpływ na środowisko w Japonii, przed awarią w FDNPP. W kolejnym rozdz. 1.3.2, zebrano i przedyskutowano stosunki aktywności wybranych izotopów, poprzez które można identyfikować te źródła. Na podstawie tamtych rozważań przyjęto, że stosunek aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ charakteryzujący źródła zaklasyfikowane jako GF (testy broni jądrowej + SNAP 9A), który należy traktować jako sygnał izotopów Pu znajdujących się w środowisku Japonii przed 2011 r. wynosi 0.037 (tab. 1.14). Z drugiej strony, na podstawie wyników symulacji zestawionych w tab. 1.3 możemy oszacować, że stosunki aktywności izotopów Pu dla reaktorów FDNPP zmieniają się pomiędzy 2.32 a 3.33. Nieco więcej informacji dostarczyć mogą wyniki pomiarów powierzchniowej warstwy gleby pobranej z terenu FDNPP (500 m w kierunku zachód północny zachód od bloku nr. 1) w okresie pomiędzy 28.03.2011 a 5.12.2011. Wyniki te były opracowane przez Japan Atomic Energy Agency (JAEA) oraz Japan Chemical Analysis Center (JCAC) i udostępnione w raportach opublikowanych przez TEPCO [151]. Na ich podstawie oszacowano stosunki aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$, które zostały przedstawione na rys. 3.7. Obliczone wartości zmieniają się w przedziale od 0.258 ± 0.038 dla daty 6.06.2011 do 3.33 ± 0.59 dla daty 4.04.2011, ze średnią 2.18, SD 0.56 i medianą 2.17. Dzięki tym wynikom, największa wartość 3.33 oszacowana na podstawie symulacji została potwierdzona empirycznie.

Bazując na faktach i założeniach przedstawionych powyżej, można wnioskować, że ok. 19 % spośród oszacowanych wyników własnych, wskazuje GF jako źródło Pu. Wszystkie wyniki dla ściółki leśnej i materiału naniesionego były większe niż 0.037 i mniejsze niż 3.33, tym samym wykluczając osobno GF i FDNPP jako jedyne źródła pochodzenia Pu, a uwiarygadniając możliwość istnienia mieszaniny tych źródeł izotopowych.

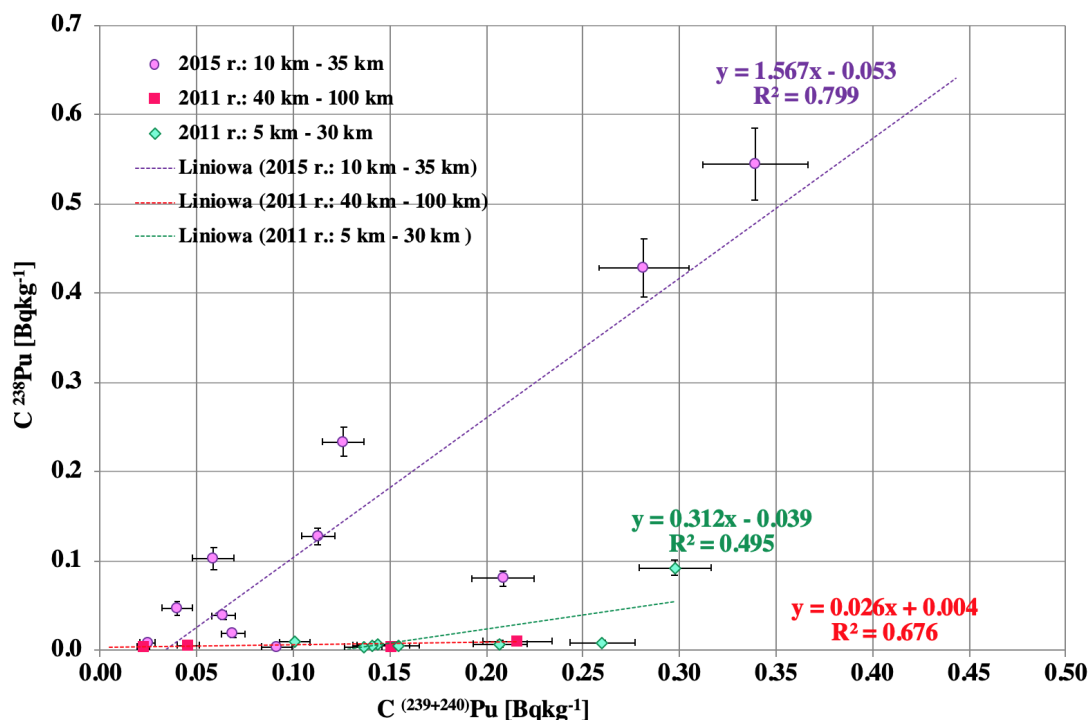
Na pytanie czy warto zachowywać selekcję rodzaju próbek w kontekście stosunku aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$, odpowiedzi dostarcza analiza wykresu 3.8. Zestawiono na nim wyniki obliczeń (stężeń aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$) dla całej poddanej analizie populacji próbek. Na jego podstawie można wyróżnić trzy grupy, tworzące na wykresie odrębne zbiory tj.: próbki pobrane w 2015 r., próbki pobrane w czasie pierwszej ekspedycji na obszar prefektury Fukushima, położony między 40 km a 100 km od FDNPP (2011 r.) oraz próbki pobrane podczas drugiej i trzeciej ekspedycji (2011 r., rozdz. 2.1). Dla dwóch pierwszych zbiorów można stwierdzić korelację rozważanych wielkości (R^2 odpowiednio 0.80 oraz 0.68) podczas gdy dla trzeciego zbioru już brak tej zależności ($R^2=0.50$). Współczynnik kierunkowy krzywej regresji dla przedstawionego układu współrzędnych (rys. 3.8) utożsamiany jest z dopasowanym stosunkiem aktywności dla zbioru, który podlegał analizie. Stąd widać, że dla drugiego zbioru próbek współczynnik wynoszący 0.026 ± 0.013 wskazuje GF jako źródło zidentyfikowanego Pu, podczas gdy dla pierwszego zbioru wartość 1.57 ± 0.26 oznacza mieszaninę źródeł izotopowych.

Wracając jeszcze do danych literaturowych i rozstrzygając sprawę pochodzenia Pu,



Rysunek 3.7: Stężenie aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ oraz stosunek aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach gleby pobranych z terenu przy reaktorze nr. 1 FDNPP w odległości 500m w kierunku zachód północny zachód od niego. [151]

Wykres przygotowany w oparciu o dane udostępnione w raportach TEPCO [151].



Rysunek 3.8: Zależność stężenia aktywności ^{238}Pu od $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima.

można stwierdzić, że istnieje dość wyraźna granica pomiędzy próbkami ze śladami GF, FDNPP lub mieszaniną śladów z różnych źródeł izotopowych. Okazuje się, że GF jako mono - źródło Pu jest bardzo istotne w przypadku próbek powierzchniowej warstwy gleby. W 2011 r., MEXT przeprowadził badania na terenie prefektury Fukushima, pobierając 62 próbki powierzchniowej warstwy gleby na obszarze do 100 km od FDNPP. Tylko dla 12 próbek (tj. ok. 20 %) wyniki stężenia aktywności ^{238}Pu były większe niż MDC. 10 z obliczonych stosunków aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ wskazywało GF jako źródło pochodzenia Pu w próbkach (wartości bliskie 0.037), zaś dwa pozostałe osiągając wartości 2.2 oraz 2.5, identyfikowały FDNPP [148]. Żadne inne źródło literaturowe nie podaje wyników wyższych niż właśnie te dla powierzchniowej warstwy gleby. Wśród danych opublikowanych przez Yamamoto et al. [105], [147] ok. 30 % wyników dla próbek gleby, było bliskich wartości 0.037 (GF).

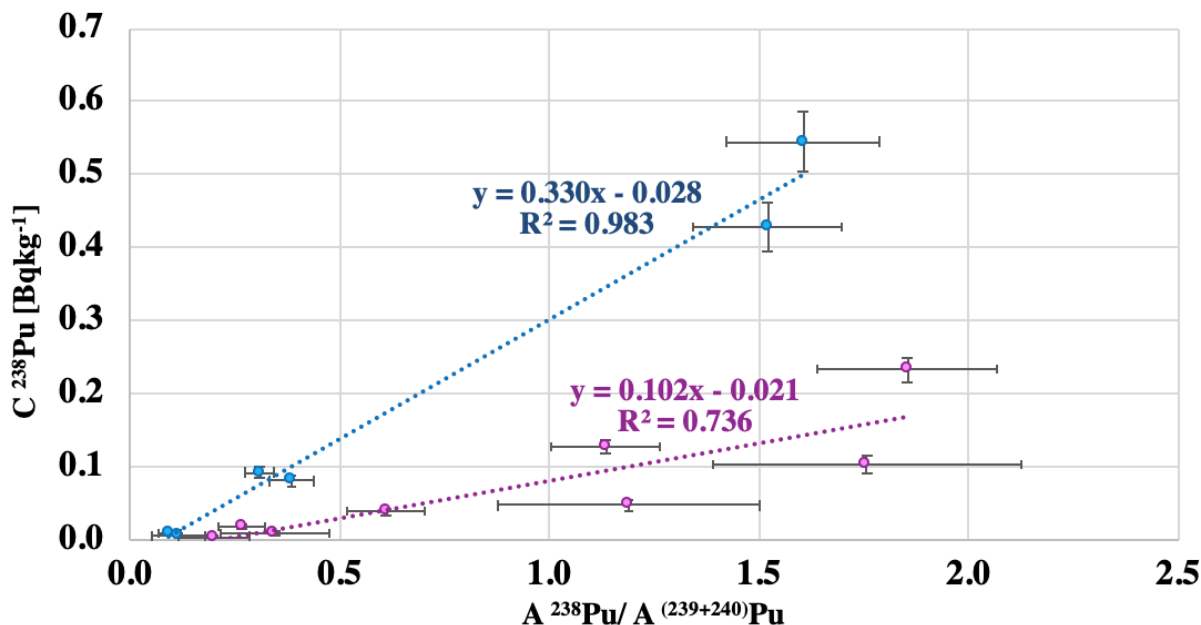
b) Ślady Pu pochodzące z FDNPP

Użycie prostego modelu 2SM (rozd. 2.2.1), działającego w oparciu o znane/założone stosunki izotopowe (w naszym przypadku stosunki aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla GF 0.037 oraz FDNPP 3.33), umożliwił weryfikację jakościową i ilościową udziału śladów izotopów Pu z FDNPP w poddanym analizie materiale badawczym. Na 23 próbki, dla których wyznaczono stosunki aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$, w 9 mono - źródłem był GF. W 14 pozostałych, udało się oznaczyć frakcje związane z FDNPP, zarówno w stężeniach aktywności $^{(239+240)}\text{Pu}$ jak i ^{238}Pu . Materiał badawczy, tych wyselekcjonowanych 14 próbek, pochodził z kierunku północno - zachodniego względem FDNPP. Na podstawie wyników analiz zebranych w tab. 2.9 łatwo zauważyć, że frakcje te różnią się diametralnie i dla $^{(239+240)}\text{Pu}$ mieszczą się w przedziale od 1.8 % do 55.2 %, podczas gdy dla ^{238}Pu od 62 % do 99 %. Jest to jedna z tych analiz, która pokazuje/udowadnia wyższość znaczenia ^{238}Pu nad $^{(239+240)}\text{Pu}$ w przypadku awarii w FDNPP (o czym była mowa w rozdz. 1.2.3). Przyczyną dysproporcji udziału zadeklarowanych powyżej izotopów Pu, związanych z FDNPP, w Pu zidentyfikowanym w próbkach, są ślady źródeł Pu, które istniały w środowisku w Japonii przed 2011 r., a dla których stosunek aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ był korzystniejszy o dwa rzędy wielkości na rzecz $^{(239+240)}\text{Pu}$.

Analizując dokładniej zbiór otrzymanych wyników można zauważyć, że gradacja udziału frakcji FDNPP zarówno w przypadku ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ przebiega od próbek gleby (najmniejszy udział) przez ściółkę leśną do materiału naniesionego (największy udział). Oznacza to, że w przypadku gleby, sygnał od FDNPP ulega rozmyciu z uwagi na dużą kontrybucję Pu z GF, zaś w przypadku ściółki leśnej i materiału naniesionego mechanizmy leżące u podstaw tworzenia obu materiałów (omawiane wcześniej) sprawiają, że istniejące ślady źródeł Pu zdeponowane w środowisku przed FDNPP, tracą dominację na rzecz markerów nowych źródeł. Wyniki tej analizy są też wskazówką, jak dobierać materiał badawczy i który materiał powinien być najbardziej wartościowym jeśli chodzi o znajdowanie śladów Pu. Oczywiście, nie należy zapominać o wyjątkach jak np. 2 próbkach gleby pobranych w trakcie ekspedycji przeprowadzanej przez MEXT [148] (zdarzenie opisane powyżej), czy wyniki pięciu próbek gleby prezentowanych w pracy Yang et al. (2017) [150] lub choćby wyniku próbki również gleby FS7_1 ze zbioru badań własnych.

Niespodziewaną wartością dodaną prezentowanej analizy, był wynik, który dowodził heterogeniczności śladów pochodzących z FDNPP. Jeśli popatrzymy na dane „przefiltrowane” już modelem 2SM (wyniki próbek zawierających ślady FDNPP), w układzie współrzędnych określonym przez stężenie aktywności ^{238}Pu związanego z FDNPP i stosunkiem aktywności izotopów Pu, to okaże się, że dane tworzą dwa dobrze zdefiniowane zbiory (rys. 3.9), co po-

twierdzą współczynniki determinacji (R^2), które dla pierwszego i drugiego zbioru wynoszą odpowiednio 0.98 oraz 0.74. Przynależność do określonej grupy nie jest zdeterminowana rodzajem materiału badawczego próbki ani odległością miejsca jej poboru od FDNPP. Niestety ze względu na ograniczony zbiór danych, nie udało się zweryfikować, czy dana zależność występuje wśród próbek pobranych w innych kierunkach względem FDNPP niż północno - zachodni.

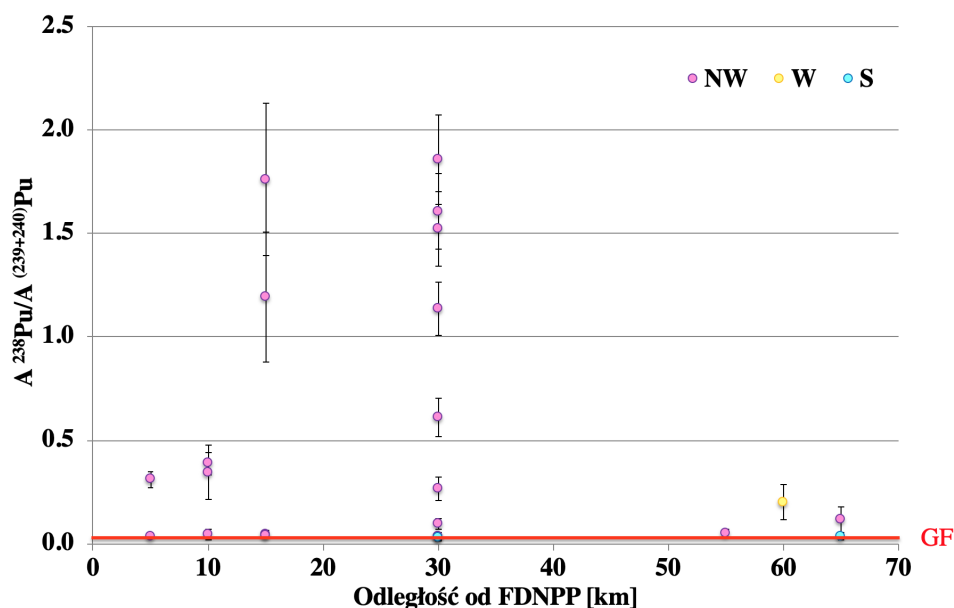


Rysunek 3.9: Zależność stężenia aktywności ^{238}Pu frakcji związanej z FDNPP od stosunku aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)\text{Pu}}$ dla próbek pobranych z obszaru prefektury Fukushima.

c) Rozkład przestrzenny stosunków aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)\text{Pu}}$

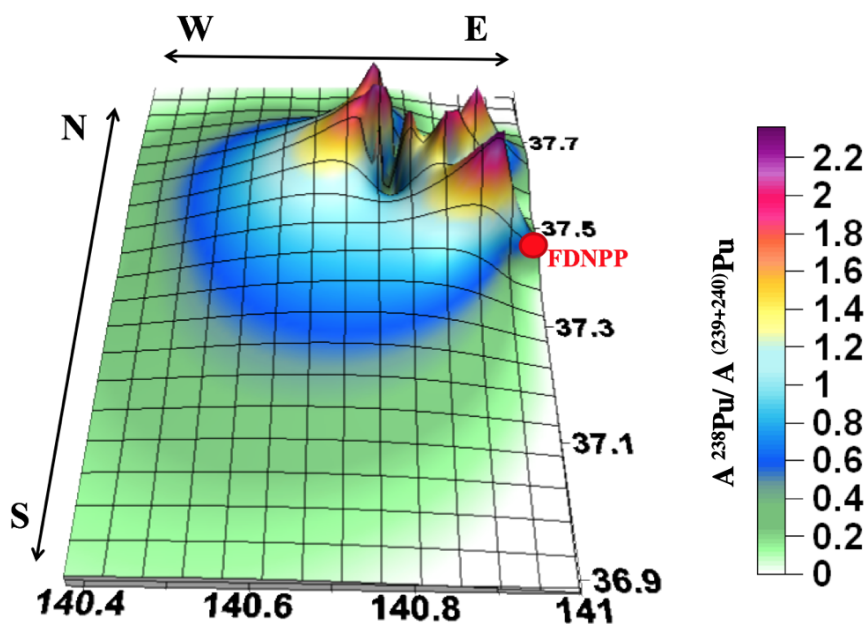
Wyniki stosunków aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)\text{Pu}}$, uzyskane w oparciu o badania własne [103] w stowarzyszeniu z danymi literaturowymi [105], [148]–[150], umożliwiły opracowanie geograficznych granic występowania śladów Pu, pochodzących z FDNPP (rzeczywistych lub wynikających z zakresu prowadzonych badań), a zdeponowanych w wybranych elementach ekosystemu lądowego. Dla powierzchniowej warstwy gleby zasięg ten rozpościerał się od 65 km w kierunku północnym od FDNPP (0.116 ± 0.062 , badania własne [103]) po odległość 50 km w kierunku południowym (0.76 ± 0.25 [105]). W przypadku ściółki leśnej, ślady Pu z FDNPP znaleziono na obszarze pomiędzy 35 km na północ (2.38 ± 0.06 [105]) po 25 km na południe (0.43 ± 0.05 [105]), podczas gdy dla materiału naniesionego był to obszar pomiędzy 30 km na północ (1.73 ± 0.05 [105]) i 45 km na południe (0.112 ± 0.007 [105]). Dodatkowo, na podstawie choćby tylko analizy wyników własnych, można wyciągnąć wniosek o braku zależności pomiędzy odległością FDNPP a wielkościami stosunku izotopowego Pu, co demonstruje rys. 3.10. To spostrzeżenie stoi w opozycji do modeli i teorii prezentowanych w 2012 r. w pracy Schwantes et al. (2012) [9]. Przyczyną takiej rozbieżności może być różna interpretacja wyników analiz i/lub dostęp do danych.

W celu uszczegółowienia rozkładu przestrzennego stosunków aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)\text{Pu}}$ na terenie prefektury Fukushima, przygotowano zestaw wszystkich dostępnych wyników tego stosunku, uzupełnionych o współrzędne geograficzne (badania własne [103] oraz



Rysunek 3.10: Zależność stosunku aktywności ^{238}Pu i ($^{239}+^{240}\text{Pu}$) od odległości od FDNPP na terenie prefektury Fukushima.

Odległość podana z dokładnością do 5 km. S - południe, W - zachód, NW - północny zachód

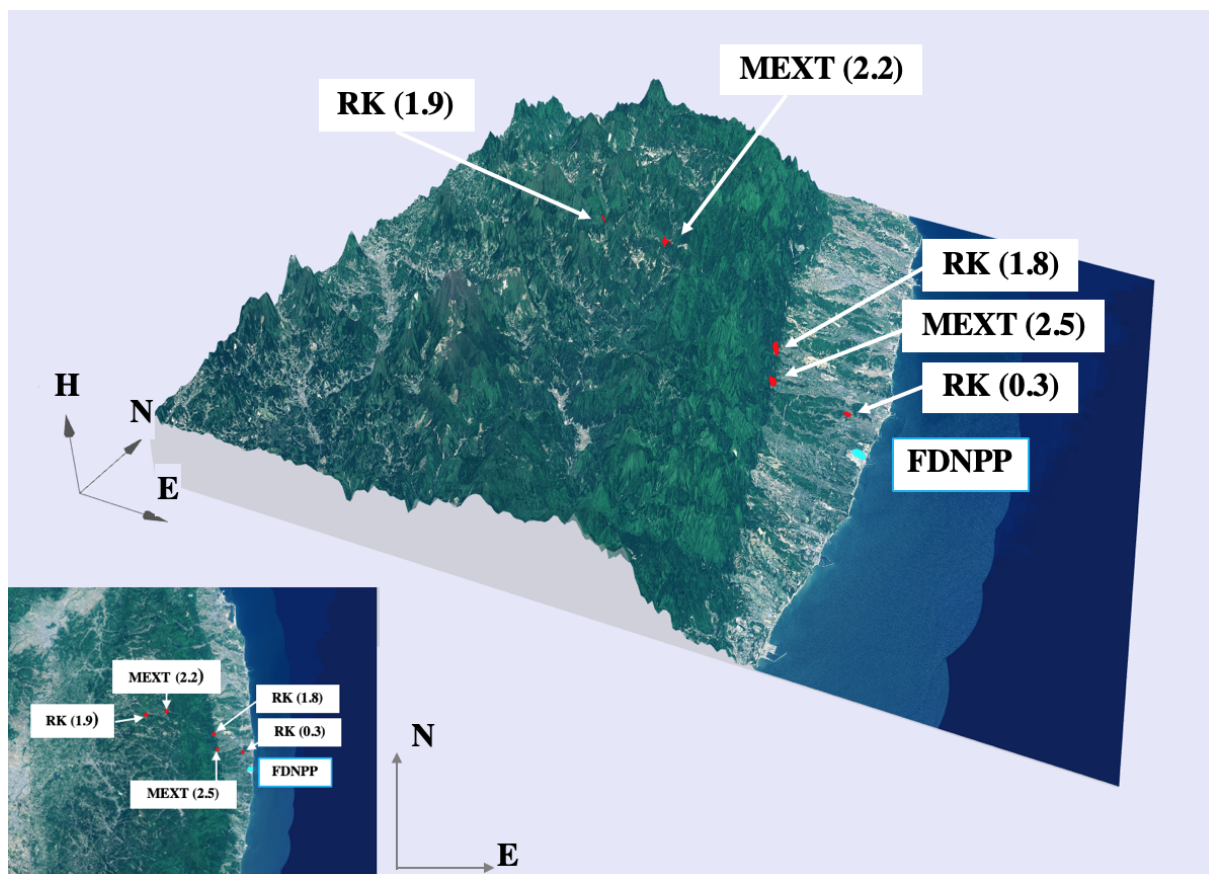


Rysunek 3.11: Rozkład przestrzenny stosunku aktywności ^{238}Pu i ($^{239}+^{240}\text{Pu}$) na terenie prefektury Fukushima.

Mapa przygotowana w oparciu o wyniki własne jak i dane literaturowe [106], [148]–[150], białe powierzchnie oznaczają wartości stosunku aktywności ^{238}Pu i ($^{239}+^{240}\text{Pu}$) bliskie GF lub brak wyniku).

[106], [148]–[150]). Posłużył on do opracowania mapy dystrybucji sygnatur Pu w środowisku lądowym prefektury Fukushima (rys. 3.11). Na jej podstawie można zauważyć, że maksymalne wartości stosunku aktywności ^{238}Pu i ($^{239}+^{240}\text{Pu}$) mają zdecydowany północno - zachodni trend. Ta zależność, wydaje się nawiązywać do rozkładu izotopów Cs w środowisku

po awarii w FDNPP (rys. 3.3). Poza tym, rozkład stosunków izotopowych Pu jest nieliniowy (co zostało stwierdzone powyżej) zaś maksima występują pomiędzy 15 km a 30 km od FDNPP. Taki układ jest nieprzypadkowy ale niejako wymuszony przez warunki geograficzne i meteorologiczne. Dla zobrazowania sytuacji, na rys. 3.12 przedstawiono lokalizację wybranych miejsc, z przygotowanego zestawu danych z wyraźnymi śladami Pu związanymi z FDNPP. Są wśród nich, miejsca położone w odległości kilku km od FDNPP, miejsca u podnóża gór ograniczających równinę Hamadōri, jak i miejsca zlokalizowane pomiędzy wzgórzami.

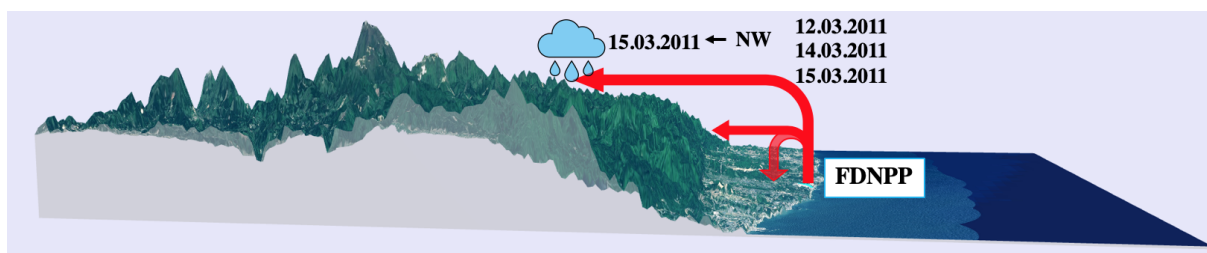


Rysunek 3.12: Rozkład przestrzennych stosunku aktywności ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ na terenie prefektury Fukushima.

Liczyby w nawiasach określają wartości stosunku aktywności ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ wyznaczone dla danego położenia zaś skróty RK oraz MEXT prace, z których pochodzą dane wartości tj. odpowiednio [103] oraz [148]. N - północ, E - wschód, H - wysokość.

Na podstawie informacji podanych powyżej, można skonstruować prawdopodobną sekwencję zdarzeń, która w sposób graficzny została przedstawiona na rys. 3.13. Rozszczelnienie obudów bezpieczeństwa bloków nr. 1, 2 i 3 FDNPP spowodowała emisję m.in. Pu do atmosfery (odpowiednio 12.03.2011, 15.03.2011, 14.03.2011). Część z powstałych aerozoli, została zdeponowana, w wyniku m.in. działania siły grawitacji, w niewielkiej odległości od reaktorów (rys. 3.7). Pozostałe aerozole transportowane wraz z masami powietrza, zostają zdeponowane na zboczach lub u podnóża gór, które stanowią dla nich naturalną fizyczną barierę. 15.03.2011, kiedy kierunek wiatru zmienia się z południowo - zachodniego na północno - zachodni aerozole, które przenoszone są w wyższych partiach atmosfery, zostają wymyte z niej na wskutek opadów deszczu. Taki scenariusz, pokrywa się z wynikami symulacji, które oprócz powyżej przytoczonej chronologii dodają jeszcze kilka szczegółów dotyczących suchej depozy-

cji, która odgrywała ogromną rolę w rozprzestrzenianiu śladów awarii FDNPP. Saito i Ogawa (2016) [152] podają, że stosunek mokrej do suchej depozycji w dniach między 11.03.2011 a 31.03.2011 wynosił 0.07. Największe znaczenie miała depozycja sucha pomiędzy 18.03.2011 a 20.03.2011. Wówczas to, wyemitowane izotopy nie osiągnęły obszaru Abukuma ale zostały zdeponowane w odległości do 15 km od FDNPP w kierunku północno - zachodnim [152]. Taki scenariusz zdarzeń, tłumaczy nie tylko rozkład śladów Pu z FDNPP w środowisku oraz kierunkowość maksymalnych wartości stosunku aktywności ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ (brak izotropowości przestrzennej rozkładu Pu) ale także uzasadnia istnienie „hot spotów” Pu (wynik koincydencji zdarzeń w FDNPP, warunków atmosferycznych i ukształtowania terenu) oraz heterogeniczność śladów Pu, co zostało stwierdzone w ustępie b) powyższego rozdziału („Ślady Pu pochodzące z FDNPP”) i zostanie dokładnie omówione w rozdz. 3.1.2.



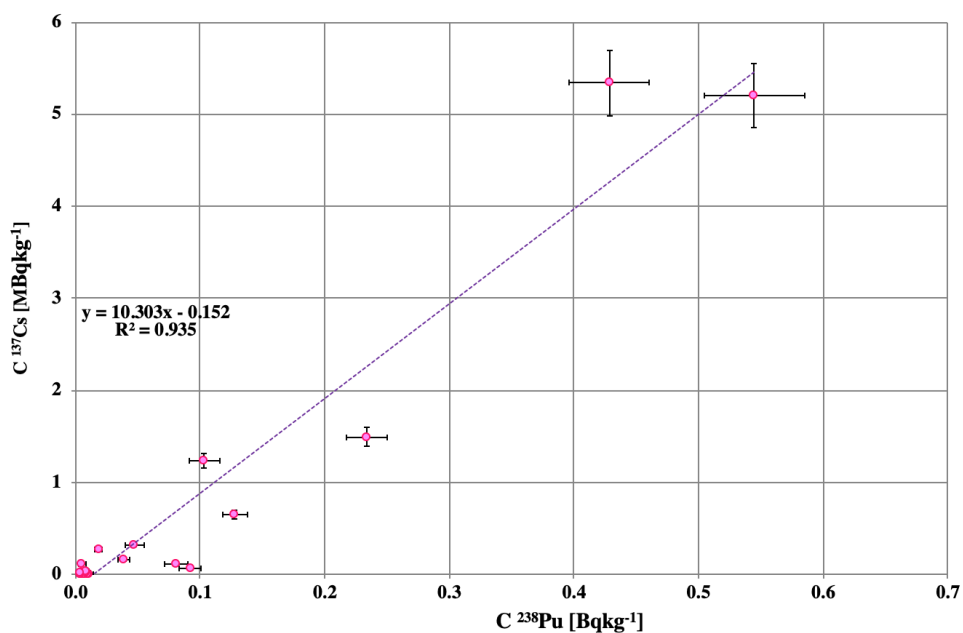
Rysunek 3.13: Schemat scenariusza uwolnień i depozycji Pu z FDNPP w środowisku lądowym prefektury Fukushima.

NW - północny zachód.

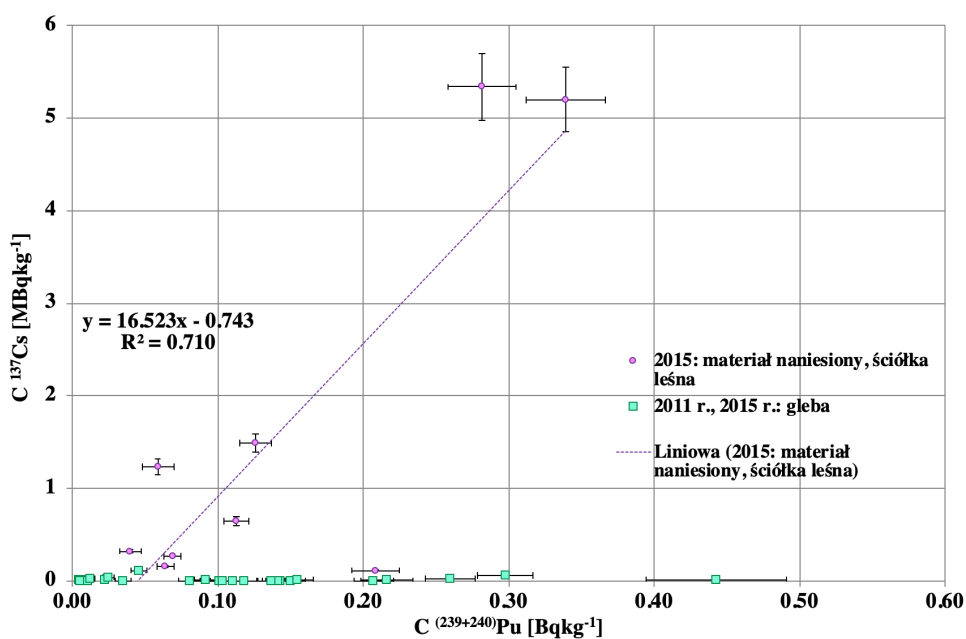
d) ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ vs. ^{137}Cs

Przestrzenne rozkłady izotopowych śladów Pu i Cs związanych z FDNPP, wykazują podobny charakter tj. kształt czy trend północno - zachodni, co mogłoby oznaczać, że bazując na ich relacjach można budować teorie co do rozprzestrzeniania izotopów w atmosferze i depozycji w środowisku. Niestety, w tej kwestii należy być bardzo ostrożnym. Właściwości fizyczne i chemiczne tych pierwiastków (tab. 1.7 i 1.9) różnicują ich zachowanie w tych samych ośrodkach. Inne temperatury wrzenia spowodowały, że w czasie awarii w FDNPP, czas rozpoczęcia ich emisji do atmosfery jak i efektywność tej emisji, były różne. Blisko dwukrotnie większa masa atomowa izotopów Pu od izotopów Cs, determinowała ich różne zachowanie w atmosferze. Stąd stosunki aktywności ^{137}Cs i ^{238}Pu lub ^{137}Cs i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$, które charakteryzowały paliwo jądrowe FDNPP, nie musiały się zgadzać z tymi znalezionymi w środowisku. I rzeczywiście tak było, czego potwierdzeniem są wykresy na rys. 3.14 oraz 3.15. Teoretyczne stosunki aktywności ^{137}Cs i ^{238}Pu (obliczone na podstawie tab. 1.3) dla FDNPP (rozumianej jako jedno źródło) oraz poszczególnych reaktorów (nr. 1, 2, 3) odpowiednio wynoszą $0.81 \cdot 10^6$, $1.0 \cdot 10^6$, $0.77 \cdot 10^6$ i $2.84 \cdot 10^6$ podczas gdy ^{137}Cs i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ wynoszą $4.6 \cdot 10^6$, $6.9 \cdot 10^6$, $4.5 \cdot 10^6$ i $18 \cdot 10^6$. Gdy porównamy je ze stosunkami aktywności dla analizowanego zbioru próbek (rys. 3.14 oraz 3.15, współczynniki kierunkowe krzywych dopasowania), to okazuje się, że wartości te w większości przypadków są rozbieżne.

Poddana rozważaniom zależność ^{137}Cs i ^{238}Pu (rys. 3.14), dwóch izotopów o różnych konotacjach do FDNPP (co zostało omówione powyżej) pokazała, że ich dopasowany stosunek aktywności, dla próbek przeanalizowanych w ramach badań własnych, wyniósł $10.30 \cdot 10^6 \pm 0.59 \cdot 10^6$. Jest to wartość o rząd wielkości większa od wyników oszacowanych



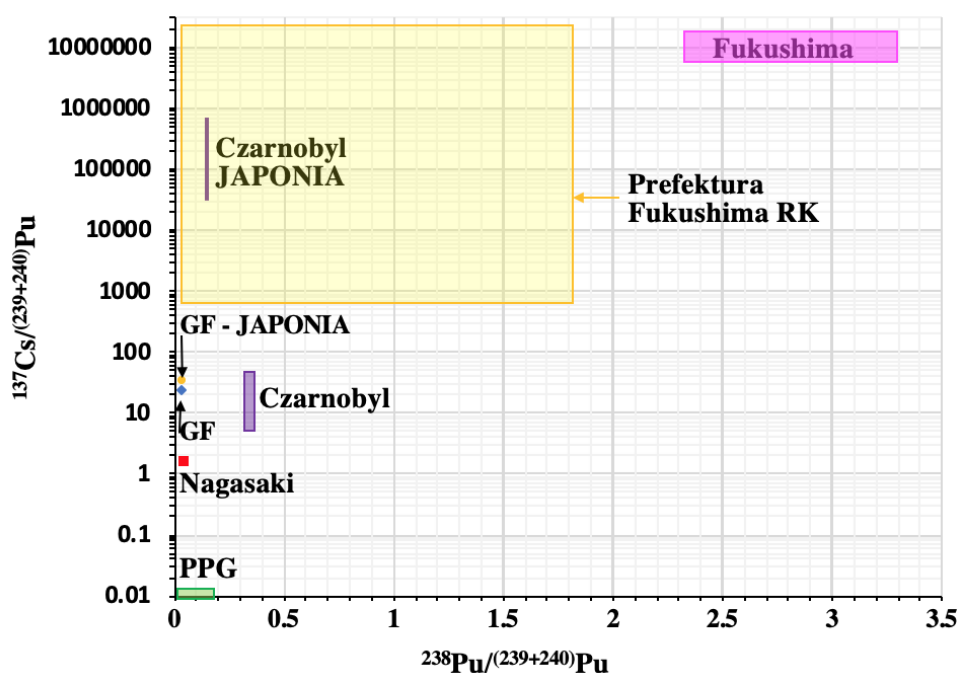
Rysunek 3.14: Zależność stężeń aktywności ^{137}Cs i ^{238}Pu w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima



Rysunek 3.15: Zależność stężeń aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima.

na podstawie składu izotopowego paliwa jądrowego, co oznacza, że obserwujemy nadmiar aktywności ^{137}Cs w stosunku do ^{238}Pu , z punktu widzenia FDNPP jako źródła izotopowego. Ta sytuacja, może być wynikiem niesymetrycznych, w czasie i przestrzeni, emisji oraz depozycji tych dwóch izotopów w środowisku lądowym. Analizując z kolei zależność ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ (rys. 3.15) widać, że różnicuje ona dwie grupy punktów. Pierwsza grupa, to punkty związane z próbkami ściółki leśnej i materiału naniesionego zaś druga to próbki gleby. Duże różnice pomiędzy tymi grupami, związane są ze źródłem pochodzenia $^{(239+240)}\text{Pu}$. Dla wszystkich pró-

bek, a zwłaszcza dla próbek gleby, głównym źródłem Pu jest GF (ustęp „Ślady Pu pochodzące z FDNPP”) czyli powinniśmy obserwować nadmiar $^{(239+240)}\text{Pu}$ względem ^{137}Cs . Niestety w przypadku próbek gleby jest to niemożliwe do stwierdzenia, ze względu na brak korelacji pomiędzy rozważanymi izotopami. Tymczasem dla próbek grupy pierwszej (ściółka leśna i materiał naniesiony) dopasowany stosunek aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ wynoszący $16.5 \cdot 10^6 \pm 4.0 \cdot 10^6$ pokazuje zależność odwrotną tj. nadmiar ^{137}Cs względem FDNPP, traktowanego jako główne źródło pochodzenia izotopów w próbce. Tak jak poprzednio, efekt ten możemy interpretować jako brak symetrii w emisji i depozycji ^{137}Cs oraz $^{(239+240)}\text{Pu}$ w środowisku.



Rysunek 3.16: Zależność stosunków aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych (tab. 1.14 i 1.3) z uwzględnieniem wyników badań własnych dla próbek pochodzących z obszaru prefektury Fukushima. Fukushima - stosunki izotopowe oszacowane na podstawie tab. 1.3, obszar prefektura Fukushima RK - zdefiniowany przez wyniki dla próbek z badań własnych, dla których można było wyznaczyć obydwa stosunki.

Obraz jakościowych i ilościowych zmian stosunków izotopowych, charakterystycznych dla awarii FDNPP, został przedstawiony na rys. 3.16, w układzie współrzędnym zdefiniowanym przez zależność stosunków aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ oraz ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$. Na jego podstawie, można wnioskować jak bardzo asymetria w depozycji pierwiastków oraz istnienie w środowisku śladów źródeł izotopowych przed 2011 r., wpływa na rejestrowane wyniki, zmieniając ich pozycję a także zakres zmienności w układzie współrzędnych zdefiniowanym powyżej, co jest jednoznaczne z maskowaniem ich źródła pochodzenia. Z drugiej strony, można wyciągnąć wniosek o tym, jak czułe są modele stosunków aktywności izotopów, na wszelkie frakcjonacje pierwiastkowe i zaburzenia, będące wynikiem wprowadzeniem dodatkowych źródeł izotopowych do środowiska.

Ameryk

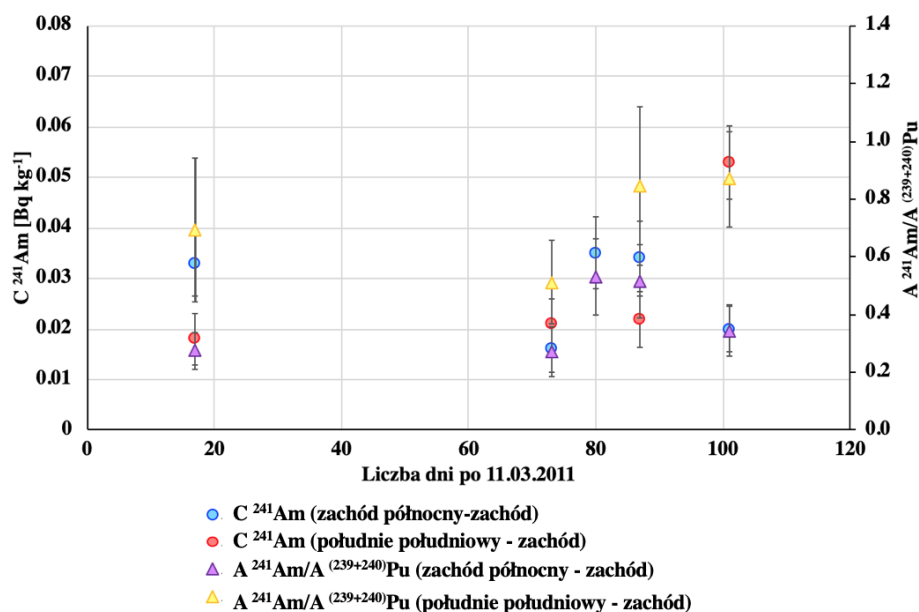
Kolejnym aktywnowcem poddanym analizom, w ramach badań własnych, był ^{241}Am . W zbiorze otrzymanych wyników, liczba tych, które są wyższe niż MDC dla ^{241}Am jest zdecy-

dowanie mniejsza niż dla ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$, co jest tendencją generalną, potwierdzoną m.in. komentarzem w pracy Yamamoto et al. (2014) [105]. Ze względu na ograniczoną liczbę źródeł danych odniesienia i niewielką liczbę wyników własnych ($n=20$), trudno zdefiniować zależności, które znajdowano m.in. dla izotopów Pu. Stężenia aktywności ^{241}Am z uwzględnieniem rodzaju materiału badawczego zmieniały się w zakresach: dla próbek gleby powierzchniowej od $< 0.012 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.132 Bq kg^{-1} , dla ściółki leśnej od $< 0.017 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.125 Bq kg^{-1} masy suchej i od $< 0.018 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.177 Bq kg^{-1} masy spopielonej oraz dla materiału naniesionego od 0.031 Bq kg^{-1} do 0.090 Bq kg^{-1} . Istnieje niewiele materiałów opublikowanych, zdających relację z badań ^{241}Am w środowisku lądowym (materiałów odniesienia), stąd trudność z wyciągnięciem wniosków generalnych. W przypadku próbek gleby, pewną wskazówką mogą być dane umieszczone w raportach TEPCO a przygotowane przez JCAC [153] (rys. 3.17). Wyniki wykonanych pomiarów, zmieniają się w przedziale od 0.016 Bq kg^{-1} do 0.035 Bq kg^{-1} , dla próbek pobranych 500 m od bloku nr. 1 FDNPP w kierunku zachodnim północno - zachodnim i od 0.018 Bq kg^{-1} do 0.053 Bq kg^{-1} , w kierunku południowym południowo - zachodnim, w okresie między 28.03.2011 a 20.06.2011. Jak łatwo zauważyć, maksymalna wartość uzyskana w badaniach własnych jest wyższa niż w badaniach zacytowanych jako referencyjne [153] pomimo, że została wyznaczona dla próbki pobranej ok. 10 km od FDNPP w kierunku północno - zachodnim. Jednak pamiętać należy, że badania wykonane przez JCAC, miały miejsce w 2011 r. zaś badania własne w 2016 r. Jeśli założymy, że wynik JCAC z 28.03.2011 dla stosunku aktywności izotopów ^{241}Am i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ wynoszący 0.48 ± 0.15 jest wynikiem referencyjnym i jednocześnie przyjmiemy stosunek aktywności ^{241}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ równy 197, oszacowany na podstawie danych uwolnień do atmosfery z FDNPP (tab. 1.3), za prawdziwy, to na podstawie przekształconego równ. 1.6 oszacujemy, że wartość $0.033 \pm 0.006 \text{ Bq kg}^{-1}$ wyznaczona dla próbki pobranej w kierunku zachodnim północno - zachodnim od bloku nr.1 FDNPP w 2011 r., powinna wynosić $0.20 \pm 0.01 \text{ Bq kg}^{-1}$ w 2016 r. Stąd wniosek, że relatywnie wyższe wyniki wyznaczone w badaniach własnych, mogą być pochodną rozpadu ^{241}Pu .

Wyniki ^{241}Am dla próbek ściółki leśnej, mieszczą się w zakresach danych literaturowych tj. od 0.012 Bq kg^{-1} do 1.64 Bq kg^{-1} masy spopielonej [105], [106] (badania wykonane w latach 2012 i 2013). Na podstawie tego porównania widać, że pomimo ok. 3 - 4 lat różnicy pomiędzy badaniami (narastanie ^{241}Am z ^{241}Pu) wyniki otrzymane w czasie eksperymentów własnych, bliższe są dolnej granicy przedziału literaturowego. Przyczyny tej obserwacji należy szukać w nieizotropowych rozprzestrzenieniu ^{241}Am a potwierdzeniem może być fakt, że również w przypadku izotopów Pu, wyznaczone w badaniach własnych stężenia aktywności są bliskie dolnej granicy danych literaturowych [105], [106].

Podobna sytuacja, ma miejsce w przypadku próbek materiału naniesionego. Dane opublikowana przez Yamamoto et al. [105] wyznaczają zakres od 0.01 Bq kg^{-1} do 2.44 Bq kg^{-1} (badania wykonane w latach 2012 - 2013). I tak jak powyżej, powodów wyników badań własnych, bliższych dolnej granicy danych traktowanych jako referencyjne, należy upatrywać w nieizotropowym rozprzestrzenieniu ^{241}Am a także w procesach środowiskowych (np.: wymywanie czy resuspensja) powodujących migrację śladów izotopowych FDNPP.

W literaturze brakuje informacji na temat stężenia aktywności ^{241}Am w próbkach środowiskowych z obszaru Japonii przed awarią FDNPP, z którymi można by było skonfrontować wartości oszacowane po awarii. Yamamoto et al. (1983) wyznaczył średnią wartość tej wielkości, dla terenu Japonii, na podstawie próbek gleby pochodzącej z pól ryżowych, na 3.2 Bq kg^{-1} na rok 1973 [154]. Wykorzystując przekształcone równ. 1.6 oraz dane z tab. 1.14 i informa-



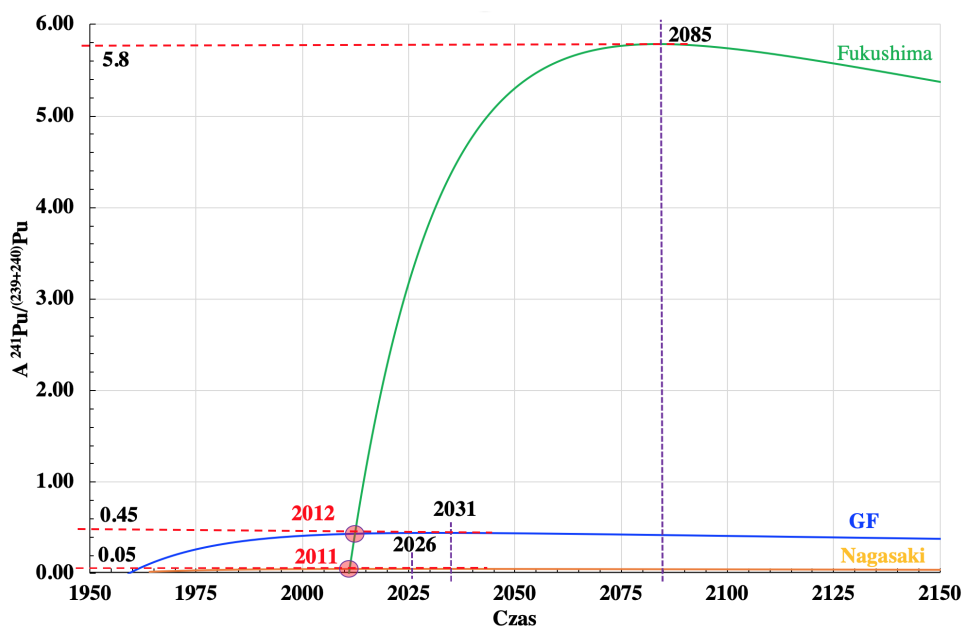
Rysunek 3.17: Stężenia aktywności ^{241}Am oraz stosunki aktywności ^{241}Am i $^{239+240}\text{Pu}$ dla próbek gleby pobranych na terenie FDNPP, 500 m od bloku nr. 1 w kierunku zachodnim północno - zachodnim oraz południowym południowo - zachodnim, na podstawie raportów TEPCO [153].

cję o średnim stężeniu aktywności $^{(239+240)}\text{Pu}$ w glebie w Japonii, wynoszącym 4.5 Bq kg^{-1} (badania wykonane w latach 1978 - 2008), możemy stwierdzić, że średnie stężenie aktywności ^{241}Am powinno wynosić 2 Bq kg^{-1} . Jak widać wszystkie wyniki badań własnych, jak i wyniki badań raportowanych przez TEPCO [153], są dalekie od wartości przyjętej za referencyjną, podobnie jak to było w przypadku izotopów Pu. Stąd, trudno na podstawie samego stężenia aktywności, stwierdzić czy ^{241}Am obecny w rozważanych próbkach jest związany jeszcze z GF czy już z FDNPP.

a) ^{241}Am vs. Pu, ^{137}Cs

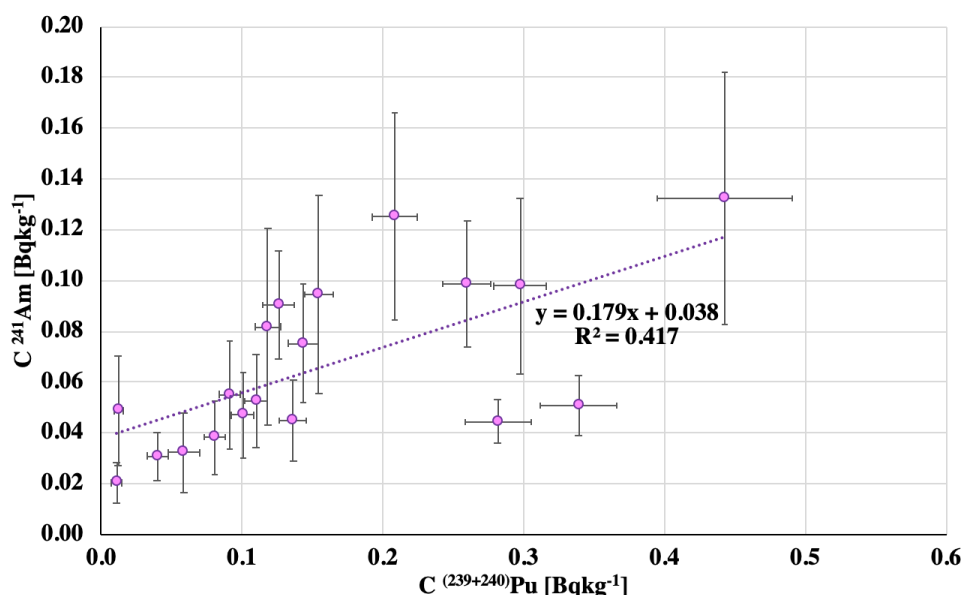
^{241}Am nie jest łatwym izotopem do interpretacji, zwłaszcza wtedy, kiedy depozycja jego źródła izotopowego (połączenie ^{241}Am i ^{241}Pu) w środowisku, nastąpiła relatywnie niedawno. Ustęp wcześniejszy pokazał, jak zmieniają się w czasie stężenia aktywności tego izotopu i jaką czujnością należy się wykazać, przy analizie danych. Dokładnie tak samo wygląda sytuacja, związana ze stosunkiem aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$, który może być wykorzystywany do różnicowania śladów źródeł izotopowych. Dynamika zmian tego stosunku, determinowana jest zasilaniem ^{241}Am z ^{241}Pu . Skala tego procesu, została graficznie przedstawiona na rys. 3.18, przy czym krzywa opisana „Fukushima”, odpowiada jedynie frakcji powstałej w wyniku rozpadu ^{241}Pu poza elektrownią.

W XXI w. stosunki aktywności (^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$) charakteryzujące źródła starsze (Nagasaki, GF) praktycznie nie zmieniają się (obszar plateau), co oznacza, że ^{241}Pu uwolniony do atmosfery w wyniku użycia bomb jądrowych w 1945 r. oraz do lat 70 -tych XX w. praktycznie uległ rozpadowi. Symulacje pozwalają oszacować, że maksima stosunku aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ wynoszące odpowiednio 0.05 oraz 0.45, dla tych dwóch zdarzeń, przypadną na rok 2026 (Nagasaki) oraz 2031 (GF), podczas gdy dla awarii w prefekturze Fukushima na rok 2085 i będzie ono równe 5.8 (przy założeniu, że rozważany ^{241}Am będzie pochodził jedynie



Rysunek 3.18: Zmiana stosunku aktywności ^{241}Am i $(^{239+240})\text{Pu}$ w czasie, dla śladów pochodzących z eksplozji bomby jądrowej w Nagasaki, śladów związanych z GF oraz awarią na terenie prefektury Fukushima (na podstawie danych zawartych w tab. 1.14 oraz tab. 1.3).

z uwolnionego do atmosfery ^{241}Pu). Innym ważnym spostrzeżeniem jest fakt, że wymieniony powyżej stosunek aktywności dla awarii FDNPP w 2011 r., był równy stosunkowi charakteryzującemu ślady eksplozji bomby jądrowej w Nagasaki, zaś w 2012 r. stosunkowi określającemu GF. Jest to kolejny punkt, który pokazuje jak bardzo newralgicznym elementem interpretacji może być stosunek aktywności ^{241}Am i $(^{239+240})\text{Pu}$.



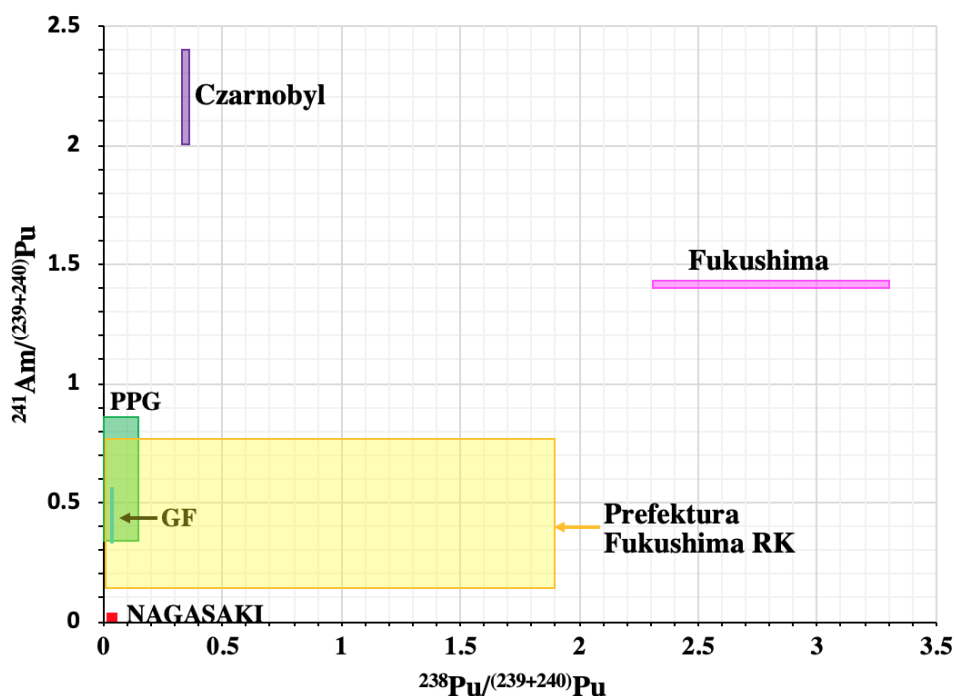
Rysunek 3.19: Zależność stężeń aktywności ^{241}Am i $(^{239+240})\text{Pu}$ w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima.

Wyniki uzyskane w ramach badań własnych, pokazują słabą korelację pomiędzy ^{241}Am i $(^{239+240})\text{Pu}$ (rys. 3.19, $R^2=0.42$), a więc współczynnik kierunkowy nie może być tym ra-

zem wykorzystany jako dopasowany stosunek aktywności rozważanych izotopów i jednocześnie jako marker źródeł izotopowych. Stosunek ten, dla zdefiniowanego zbioru próbek zmienia się w zakresie od 0.15 do 4.0 ze średnią \pm SD wynoszącą 0.74 ± 0.88 oraz medianą 0.52. Na podstawie tego krótkiego zestawienia widać, że zbiór jest bardzo zróżnicowany. Należy też dodać, że wartości bliskie górnej granicy przedziału zmienności, obarczone są niepewnościami względnymi ok. 50%. Po wykluczeniu z rozważań dwóch największych wyników tj. 4.0 ± 2.1 oraz 1.88 ± 0.95 , wyznaczonych odpowiednio dla próbek HN14 oraz FS11, średnia \pm SD oraz mediana dla pozostałego zbioru danych wynoszą 0.48 ± 0.19 i 0.48, przy zakresie zmienności stosunku pomiędzy 0.15 a 0.78. Oszacowana średnia i mediana wskazują na GF jako główne źródło pochodzenia ^{241}Am . Jest to zgodne z komentarzami literaturowymi [106], badań wykonanych w 2012 r. dla ściółki leśnej i materiału naniesionego (badania własne uwzględniały również glebę powierzchniową). Należy jednak pamiętać, że dla 2012 r. zarówno stosunek FDNPP jak i GF powinny być sobie równe w granicach niepewności (komentarz powyżej) czyli mogły się imitować nawzajem. Natomiast obszerniejsze zestawienie [105] sygnalizuje, że średnia tego stosunku również dla takiego samego zestawu rodzajów materiału badawczego, była wyższa tj. wynosiła 0.56 ± 0.16 dla badań z 2012 r. i 2013 r., co sugeruje już niewątpliwy wpływ ^{241}Am z FDNPP.

Skupiając się jednak jeszcze, na wynikach badań własnych, bliskich dolnej granicy wyznaczonego zakresu, można stwierdzić nadmiar $^{(239+240)}\text{Pu}$ względem ^{241}Am . I to właśnie ta relacja, a nie odwrotna (niedmiar ^{241}Am względem $^{(239+240)}\text{Pu}$) jest prawdziwa. Ma to swoje uzasadnienie w pochodzeniu $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach materiału naniesionego, dla którego wspomniane najmniejsze wartości w/w stosunku aktywności zostały oszacowane. Zidentyfikowany $^{(239+240)}\text{Pu}$ został powiązany z FDNPP, a więc na tej podstawie, ^{241}Am (którego jest mniej niż sugerują to obliczenia oparte na danych teoretycznych (tab. 1.3) bądź badania przeprowadzone na terenie FDNPP (rys. 3.17)) musi pochodzić z innego, starszego źródła (w naszym przypadku GF). Przedstawiony fakt (relatywnie niskie stosunki aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$) ma także drugie znaczenie tj. profil rozkładu przestrzennego ^{241}Am w 2015 r. (rok poboru próbek) prawdopodobnie był różny od profilu Pu. To stwierdzenie, ma też swoje uzasadnienie, w którym czas odgrywa bardzo ważną rolę. Pu i Am są pierwiastkami o wysokich temperaturach wrzenia (tab. 1.9 i 1.11) tj. zostały uwolnione do atmosfery z dużym prawdopodobieństwem w tym samym czasie i w wyniku tych samych procesów. Jednak, inne właściwości chemiczne, spowodowały zróżnicowanie w ich zachowaniu w środowisku na przestrzeni lat, manifestujące się w innym rozkładzie przestrzennym tych pierwiastków. Ten sam brak spójności, między wynikami ^{241}Am i izotopów Pu może być drogą, do wyjaśnienia istnienia przypadków dwóch najwyższych wyników stosunku aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ (komentowanych w akapicie powyżej), przy jednoczesnym braku sygnatury FDNPP w wynikach ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$.

Umieszczając wyniki własne na płaszczyźnie zależności stosunków aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ (rys. 3.20), możemy obserwować ich relacje z zakresami wartości charakteryzującymi różne źródła izotopowe, znajdujące się w środowisku w 2016 r. (rok wykonania analiz). Na wykresie tym umieszczono również obszar opisany jako Fukushima, który odnosi się jedynie do ^{241}Am powstałego z ^{241}Pu , uwolnionego do atmosfery w czasie awarii. Każde wprowadzenie poprawki, wywołane określeniem ^{241}Am i/lub jego stosunku aktywności do $^{(239+240)}\text{Pu}$ we frakcji wyemitowanej do środowiska, spowoduje przesunięcie zamarkowanego obszaru wzdłuż osi pionowej, w kierunku wyższych wartości. Na podstawie przedstawionego zestawienia oraz wcześniejszych interpretacji można stwierdzić, że



Rysunek 3.20: Zależność stosunków aktywności ^{241}Am i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych (tab. 1.14 i 1.3) z uwzględnieniem wyników badań własnych dla próbek pochodzących z obszaru prefektury Fukushima.

Fukushima - stosunki izotopowe oszacowane na podstawie tab. 1.3, obszar prefektura Fukushima RK - zdefiniowany przez wyniki dla próbek, dla których można było wyznaczyć obydwa stosunki.

wskaźnik w postaci stosunku aktywności ^{241}Am i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ nie jest dobrym narzędziem różnicującym źródła izotopowe w środowisku, w przypadku gdy mamy do czynienia ze źródłami relatywnie „świeżymi” jak np. FDNPP. Zakres wyników własnych tego stosunku, jest bardzo zbliżony do GF i PPG (rys. 3.20), a więc śladów źródeł istniejących przed awarią FDNPP. Gdyby nie uzupełnienie wiedzy o informacje wynikające z relacji izotopów Pu, trudno byłoby stwierdzić/określić wpływ ^{241}Am pochodzącego z FDNPP, na materiał/obszar badawczy. Oczywiście ta sytuacja będzie ewoluowała wraz z upływem czasu, kiedy to stosunek izotopowy ^{241}Am i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ będzie sukcesywnie rósł (rys. 3.19) i stawał się bardziej odróżnialny, od pozostałych już dobrze zdefiniowanych dla zidentyfikowanych źródeł izotopowych.

Zestawienie wyników ^{241}Am i ^{137}Cs nie wykazało żadnej korelacji pomiędzy tymi izotopami, w materiale badanych próbek. Stosunki aktywności tych izotopów są ogromnie zróżnicowane i zmieniają się od wartości rzędu 10^{-9} do 10^{-4} . Oznacza to, że izotopy Cs nie są lub nie muszą być markerami depozycji ^{241}Am w środowisku lądowym i jednocześnie sugeruje, że ich profile rozkładu przestrzennego są całkowicie rozbieżne. Jest to fakt, który mógł zaistnieć już w 2011 r. w czasie depozycji lub uwidocznić się i pogłębić wraz z upływem czasu, pod wpływem procesów środowiskowych.

Kiur

Kiur, jak to zostało skomentowane w rozdz. 2.1.2, był nieoczekiwanym wynikiem analiz własnych choć nie niemożliwym. Izotopy Cm, mają duże znaczenie z punktu widzenia radiologicznego gdyż ich produktami rozpadu są izotopy Pu (rys. 1.12). Na podstawie tab. 1.3

można już wnioskować, że to właśnie z izotopami Cm były związane największe aktywności aktywności uwolnionych do środowiska, w trakcie awarii FDNPP.

W literaturze brakuje informacji na temat obecności izotopów Cm w środowisku w Japonii, przed awarią FDNPP. Biorąc pod uwagę skalę czasową i rozprzestrzenianie źródeł izotopowych na kuli ziemskiej może to oznaczać, że obecność ta była pomijalna. Identyfikacji Cm w trakcie badań własnych dokonano na podstawie ^{244}Cm (udział ^{243}Cm został wykluczony lub uznany za mało istotny na podstawie widm alfa - spektrometrycznych, rozdz. 2.1.2) jedynie w próbkach materiału naniesionego ($n=4$) oraz ściółki leśnej ($n=3$). Ta obserwacja potwierdza walory tych materiałów badawczych, jako magazynu śladów „świeżego” źródła izotopowego w środowisku. Stężenia aktywności dla materiału naniesionego, mieściły się w przedziale od $0.0289 \text{ Bq kg}^{-1}$ do 0.132 Bq kg^{-1} , podczas gdy dla ściółki leśnej od 0.033 Bq kg^{-1} do 0.094 Bq kg^{-1} masy suchej lub od 0.035 Bq kg^{-1} do 0.133 Bq kg^{-1} masy spopielonej. Ze względu na małą liczbę danych, trudno jest określić czy rodzaj próbki miał wpływ na otrzymany wynik, ponieważ przedziały zmienności pokrywały się.

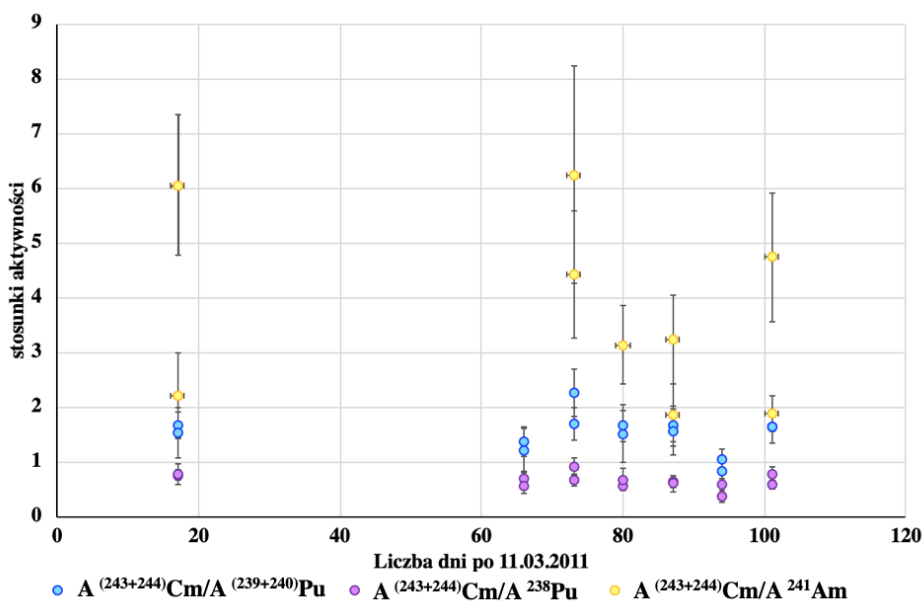
Do momentu powstania niniejszego opracowania, znane są tylko dwie publikacje, w których zaraportowano wyniki izotopów Cm w rozważanym materiale badawczym [105], [106] oraz zbiór raportów TEPCO dotyczący próbek gleby powierzchniowej [153]. Szczególnie ta ostatnia pozycja może ciekawić ze względu na to, że jest to jedyny dostępny zbiór danych Cm dla gleby po awarii FDNPP. Należy jednak zwrócić uwagę, na bliskość miejsc poboru próbek od budynku reaktora nr. 1 FDNPP (500 m). To ta zmienna, prawdopodobnie była głównym powodem otrzymania unikalnych danych. We wszystkich trzech pozycjach literaturowych, oprócz sumy stężeń aktywności ^{243}Cm i ^{244}Cm , podano również wyniki dla ^{242}Cm . Ma to swoje uzasadnienie, w okresie prowadzenia cytowanych badań pomiędzy 2011 r. a 2013 r. Badania własne, wykonywane w 2016 r. uniemożliwiły dokonania identyfikacji tego krótkożyłowego izotopu. Wyniki literaturowe dla $(^{243}+^{244})\text{Cm}$ w próbkach materiału naniesionego, zmieniały się w zakresie od 0.005 Bq kg^{-1} do 2.78 Bq kg^{-1} , a dla ściółki leśnej od 0.02 Bq kg^{-1} do 5.15 Bq kg^{-1} masy spopielonej i były to wielkości o ok. dwa rzędy wielkości mniejsze od wyników otrzymanych dla ^{242}Cm [105], [106], co dość dobrze koresponduje z wynikami oszacowań izotopów uwolnionych do atmosfery (tab. 1.3).

a) ^{244}Cm vs. Pu, ^{241}Am , ^{137}Cs

Prowadząc analizę wyników badań dotyczących ^{244}Cm i systematyzując je nie tylko z punktu widzenia jakościowego, ilościowego ale również historycznego (badania wykonywane między 2011 r. a 2016 r.) możemy odtworzyć chronologię ich ewolucji w środowisku lądowym.

Na pytanie jakich wartości zależności ^{244}Cm od innych izotopów powinniśmy się spodziewać, odpowiadają właśnie badania wykonane przez JCAC na próbkach gleby pobranych w odległości 500 m od bloku nr. 1 FDNPP, w kierunku zachód północny zachód oraz południe południowy zachód (w systemie po jednej z każdego kierunku w danym dniu) pomiędzy 28.03.2011 a 20.06.2011 i opublikowane w raportach TEPCO [153]. Na rys. 3.21 przedstawiono wartości stosunków aktywności ^{244}Cm i $(^{239}+^{240})\text{Pu}$, ^{244}Cm i ^{238}Pu oraz ^{244}Cm i ^{241}Am oszacowane na podstawie tych danych. W oparciu o zaprezentowane wyniki, można wnioskować, że wartości wybranego stosunku izotopowego nawet w obrębie dnia poboru próbek różnią się od siebie, co oznaczać mogło nieizotropowe rozprzestrzenianie izotopów w środowisku po emisji z FDNPP. Największe zróżnicowanie wykazały stosunki aktywności ^{244}Cm i ^{241}Am . Różnica względna tych wyników, otrzymanych dla tego samego dnia poboru próbki, dochodziła nawet do 56 % wyniku większego z wyraźnym trendem wartości większych dla kierunku

zachód północny zachód.



Rysunek 3.21: Stosunki aktywności ^{244}Cm i $^{(239+240)}\text{Pu}$, ^{244}Cm i ^{238}Pu oraz ^{244}Cm i ^{241}Am dla próbek gleby pobranych na terenie FDNPP 500 m od bloku nr. 1 w kierunku zachodnim północno - zachodnim oraz południowym południowo - zachodnim na podstawie raportów TEPCO [153].

W następnym kroku, zestawiono ze sobą średnie i odchylenia standardowe dla prezentowanego powyżej przygotowanego zbioru stosunków aktywności wraz z takimi samymi danymi statystycznymi dla próbek ściółki leśnej oraz materiału naniesionego pochodzącymi z pracy Yamamoto et al. (2014) oraz z badań własnych, uzupełniając je o stosunek aktywności ^{244}Cm i ^{137}Cs . Pełne zestawienie znajduje się na rys. 3.22.

Jak łatwo zauważyć mamy do czynienia z dysproporcją ^{244}Cm względem izotopów Pu. Stosunek ^{244}Cm i $^{(239+240)}\text{Pu}$ z czasem maleje, podczas gdy ^{244}Cm i ^{238}Pu pozostaje stały w granicach niepewności. To może zastanawiać, z uwagi na fakt, że oba izotopy Pu podlegają takim samym procesom chemicznym i fizycznym w środowisku (brak frakcjonacji izotopowej) a wiedząc, że mają takie same właściwości chemiczne oczekujemy zbliżonych rezultatów. Tymczasem, wytłumaczenie tej obserwacji tkwi w obecności izotopów Pu w środowisku w Japonii, przed FDNPP. Jak to pokazano w rozdz. 2.2.1., frakcja $^{(239+240)}\text{Pu}$ związana z FDNPP w określonej grupie próbek z badań własnych, zmienia się w zakresie od 7 % do 55 %, co daje asumpt do stwierdzenia, że frakcja pochodząca z innych niż FDNPP źródeł była znacząca w 2015 r. Z drugiej strony, analizując w ten sam sposób wyniki ^{238}Pu widzimy, że frakcja FDNPP mieści się pomiędzy 87 % a 99 % czyli to ona dominuje, zaś pozostała ma niewielkie znaczenie. Dodając do tego informacje o stosunkach izotopowych Pu charakteryzujących źródła izotopowe (tab. 1.14) widzimy, że sygnatury te cechuje nadwyżka $^{(239+240)}\text{Pu}$ względem ^{238}Pu . Stosunek ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ przyjęty jako definiujący GF w Japonii, wynosi 0.037. Procesy środowiskowe zachodzące w latach 2011 - 2015 doprowadziły do mieszania śladów FDNPP ze śladami pozostałych źródeł izotopowych. W ten sposób, w danym materiale badawczym oprócz sygnatur „świeżego” zdarzenia pojawiły się $^{(239+240)}\text{Pu}$ i proporcjonalnie ^{238}Pu , jako markery zdarzeń z przeszłości. Z uwagi na dość dużą różnicę poziomów aktywności, tych dwóch izotopów (ok. 2 rzędy wielkości), obecność ^{238}Pu z innych niż FDNPP źródeł, miała

		Stosunek aktywności $(^{243+244}\text{Cm})$ lub ^{244}Cm i			
		$(^{239+240}\text{Pu})$	$A^{238}\text{Pu}$	^{241}Am	^{137}Cs
a	Pobór próbek + analiza	2011 r.	1.53 ± 0.34	0.66 ± 0.13	3.76 ± 1.70
b	Pobór próbek + analiza	2012 r.	1.10 ± 0.61	0.64 ± 0.45	1.96 ± 1.22
		2013 r.			
		2014 r.			
	Pobór próbek	2015 r.			
c	Analiza	2016 r.	0.57 ± 0.36	0.60 ± 0.43	1.29 ± 0.58
					$(2.0 \pm 3.8) \cdot 10^{-7}$

Rysunek 3.22: Stosunki aktywności (średnia \pm SD) ^{244}Cm i $(^{239+240}\text{Pu})$, ^{244}Cm i ^{238}Pu , ^{244}Cm i ^{241}Am oraz ^{244}Cm i ^{137}Cs na podstawie a) [153] b) [105] c) badań własnych. Wyniki w wierszu a) dotyczą próbek gleby, w wierszu b) i c) ściółki leśnej i materiału naniesionego.

niewielkie/pomijalne znaczenie. Efekt dysproporcji izotopów Pu względem ^{244}Cm , nie był widoczny lub nie był widoczny w takim natężeniu w latach wcześniejszych (tj. w latach 2012 - 2013) ze względu na krótszy czas jaki upłynął od awarii jądrowej.

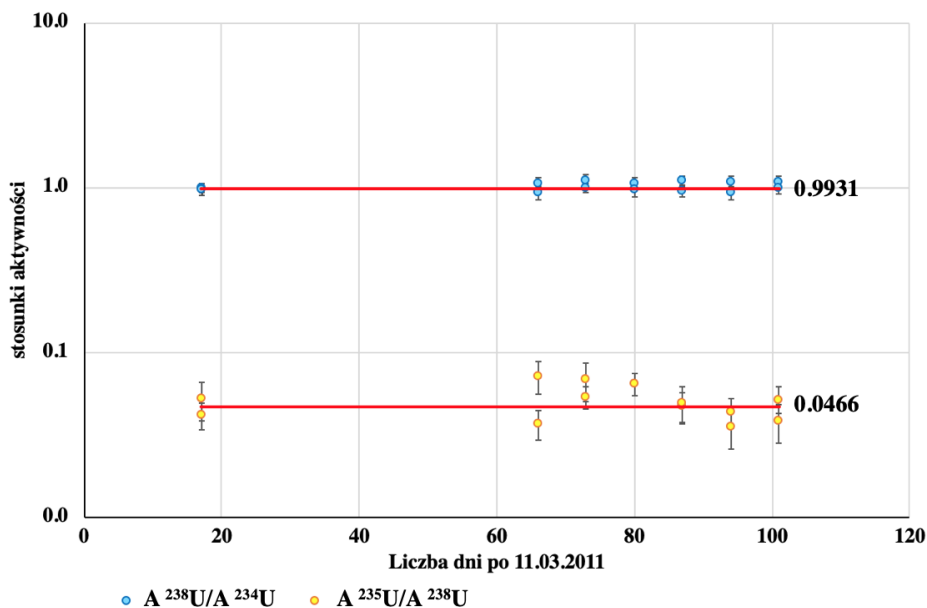
Stosunki aktywności ^{244}Cm i ^{241}Am wykazują wyraźny trend malejący. Zarówno Cm jak i Am, mają podobne właściwości chemiczne (rozdz. 2.2.1), co oznacza, że ich zachowanie w środowisku powinno być sterowane takimi samymi procesami. Tymczasem pamiętać należy, że ^{241}Am pochodzi z rozpadu ^{241}Pu , stąd jego ilość w środowisku z czasem będzie rosła. Poza tym właściwości chemiczne Am i Pu są różne, co powoduje różne ich zachowanie w środowisku, o czym świadczyć może brak korelacji pomiędzy ^{241}Am i izotopami Pu, stwierdzony na podstawie badań własnych.

Średnie wartości stosunków ^{244}Cm i ^{137}Cs , w latach 2012 - 2013 oraz 2016 są stałe, natomiast SD wskazują na dość duży rozrzut wyników w obu przypadkach. Ta obserwacja sugeruje, rozbieżność wyników Cs i Cm w środowisku, co jest skutkiem różnych profili depozycji (Cm, podobnie jak inne aktywności, ma wysoką temperaturę wrzenia a w związku z tym był uwalniany w trakcie innych procesów z reaktorów FDNPP niż Cs) i/lub migracji tych izotopów, w wyniku procesów środowiskowych.

Uran

Izotopy U, jako główne składowe paliwa jądrowego stosowanego w reaktorach FDNPP, podobnie jak inne aktywności tj.: Pu, Am czy Cm powinny być uwolnione do środowiska w trakcie awarii FDNPP. Jednak oznaczalność U pochodzącego z awarii może napotkać na trudności gdyż U po Th jest najbardziej rozpowszechnionym aktywnościem na kuli ziemskiej. Jego izotopy o największej abundancji to właśnie: ^{238}U (99.2742 %), ^{235}U (0.7204 %) oraz ^{234}U (0.0054 %) [127]. Stosunki mas izotopów U naturalnego, rekomendowane przez IUPAC, przełiczone na stosunki aktywności, które wynosiły dla ^{235}U i ^{238}U 0.047 oraz dla ^{238}U i ^{234}U 0.99, były różne od stosunków charakteryzujących paliwo jądrowe reaktorów FDNPP. W oparciu o

wyniki symulacji uzyskanych przy użyciu kodu ORIGEN2, zebranych w pracy Nishihara et al. (2012) [10], oszacowano w/w stosunki i dla reaktora nr. 1 wynosiły one odpowiednio 0.111 i 2.59, dla reaktora nr. 2: 0.124 i 3.64, dla reaktora nr. 3: 0.123 i 2.05. Są to dość wyraźne sygnatury, odbiegające od tego z czym możemy spotkać się w środowisku. Pomimo tego, ani w powierzchniowej warstwie gleby z obszaru FDNPP [153], ani w próbkach podlegających badaniom własnym (tab. 2.8) nie znaleziono śladów U pochodzących z FDNPP. Na rys. 3.23 przedstawiono wartości stosunków otrzymane na podstawie badań JCAC i pochodzące z raportów TEPCO [153]. Wszystkie one skupiają się wokół wartości charakteryzujących U naturalny. Trzy wyniki ^{235}U i ^{238}U , dla próbek pobranych pomiędzy 16 a 23 maja 2011 r., wykazują pewną tendencję wzrostową względem stosunku U naturalnego, jednak efekt ten nie potwierdził się w stosunku aktywności ^{238}U i ^{234}U . Oczywiście przedstawiona analiza nie jest dowodem wystarczającym do stwierdzenia, że do emisji U nie doszło. Badania pojedynczych mikrocząstek, znalezionych w środowisku [155], [156], znakowanych znaczącą zawartością izotopów Cs pokazały, że wyznaczone dla nich stosunki izotopowe ^{235}U i ^{238}U , przy użyciu spektrometrii mas, identyfikują wypalone paliwo jądrowe jako źródło pochodzenia. Sygnaturami U, które nie były rozpatrywane w niniejszym opracowaniu, a również wnoszą asumpt do rozpoznawania śladów FDNPP, są te zawierające informacje o ^{236}U [104], [150]. Na podstawie badań wykonanych tak jak wyżej przy użyciu spektrometrii mas, dowiedziono, że są one w stanie różnicować ślady różnych źródeł izotopowych.



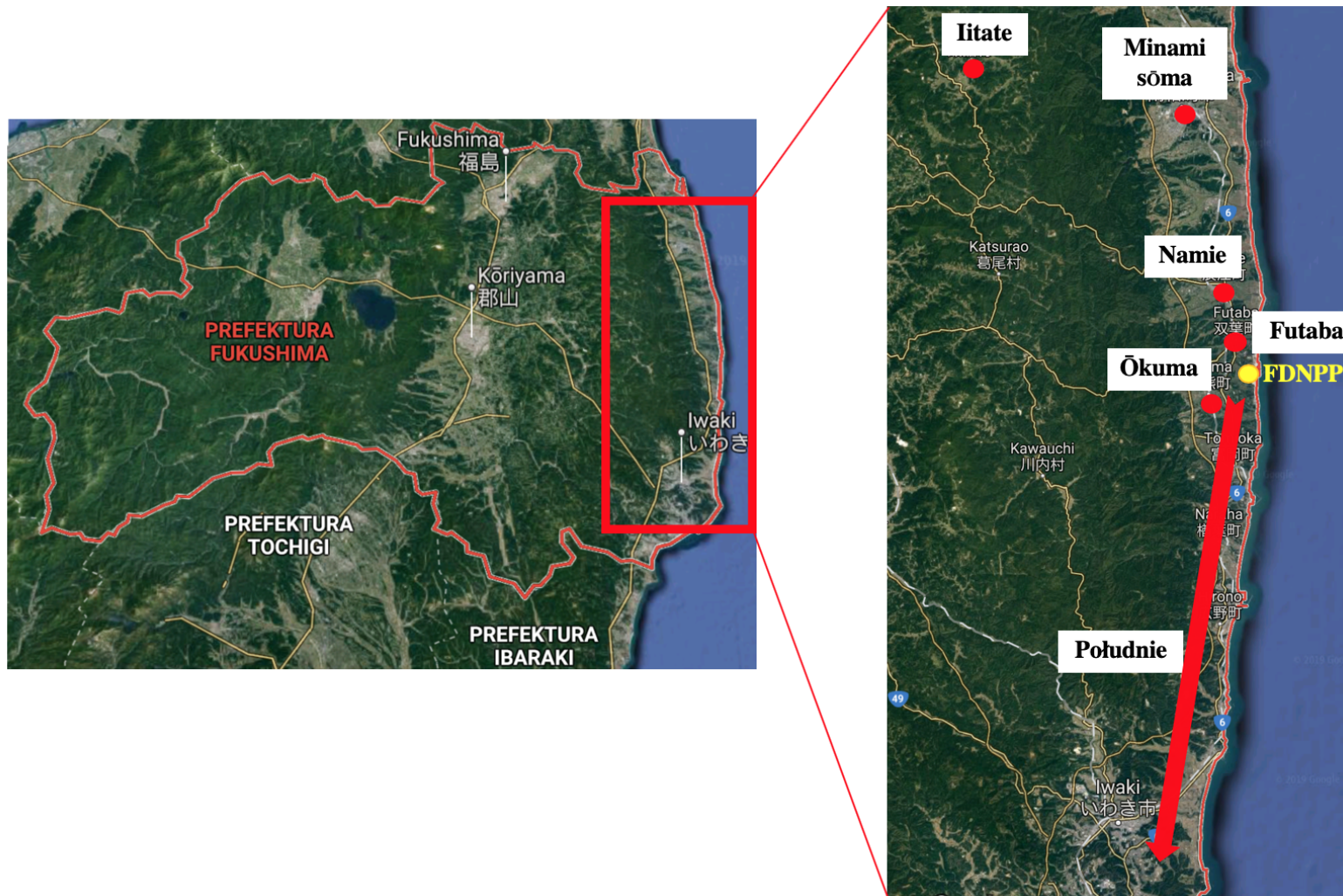
Rysunek 3.23: Stosunki aktywności ^{238}U i ^{234}U oraz ^{235}U i ^{238}U dla próbek gleby pobranych na terenie FDNPP 500 m od bloku nr. 1 w kierunku zachodnim północno - zachodnim oraz południowym południowo - zachodnim na podstawie raportów TEPCO [153]. czerwone linie - referencyjne wartości w/w stosunków na podstawie [127].

3.1.2 Heterogeniczność izotopowych śladów FDNPP w próbkach środowiskowych

Do tego momentu, w dyskusji niniejszego opracowania, interpretacja wyników literaturowych lub badań własnych, opierała się na odróżnieniu śladów wypalonego paliwa jądrowego przypisywanych FDNPP od innych źródeł izotopowych (rozdz. 1.3.2). Ale zgodnie z tym co zostało stwierdzone w rozdz. 2.2.2 i biorąc pod uwagę złożoność/wielowątkowość awarii w FDNPP (emisja radionuklidów z kilku reaktorów FDNPP, w różnym czasie, pod wpływem różnych mechanizmów, przy różnych warunkach meteorologicznych, etc.) trudno ją traktować jako jedno, dobrze zdefiniowane źródło izotopowe. Takie spojrzenie na awarię, daje asumpt do stwierdzenia, że w wynikach przypisanych jednoznacznie FDNPP a znalezionych w próbkach środowiskowych, powinna być „zaszyta” struktura subtelna śladów izotopowych, przynależnych konkretnym reaktorom FDNPP. Wykonanie „dekonwolucji” śladów izotopowych, otwiera nową przestrzeń dla interpretacji otrzymanych wyników. Na ich podstawie możemy nie tylko określić koegzystencję markerów konkretnych reaktorów FDNPP ale wyznaczyć zasięg śladów izotopowych dla każdego reaktora. Łącząc te dane z informacjami meteorologicznymi, dostajemy filtr weryfikacji przypadków nieprawdziwych a tym samym narzędzie, do tworzenia wiarygodnych zbiorów danych.

Przystępując do tego zadania trzeba wziąć pod uwagę właściwości fizyczne izotopów, które stanowią będą bazę wykonywanych analiz. Najbardziej podstawowym parametrem systematyzacji radionuklidów jest ich lotność. Stąd z jednej strony mamy Cs, I, Te, etc. z drugiej zaś aktynowce (przesunięcia w rozkładach przestrzennych, rozdz. 3.1.1). Liczba wyników zebranych w literaturze, przemawia na korzyść pierwiastków lotnych. Jednak duże różnice w metodyce wykonywanych analiz oraz dane na różnym poziomie szczegółowości (o czym była mowa w rozdz. 3.1.1 „Cez”) powodują, że bardziej wiarygodne wyniki może dać analiza bazująca na aktynowcach z zastrzeżeniem, że efekt prowadzonych rozważań, odnosił się będzie jedynie do tej grupy pierwiastków.

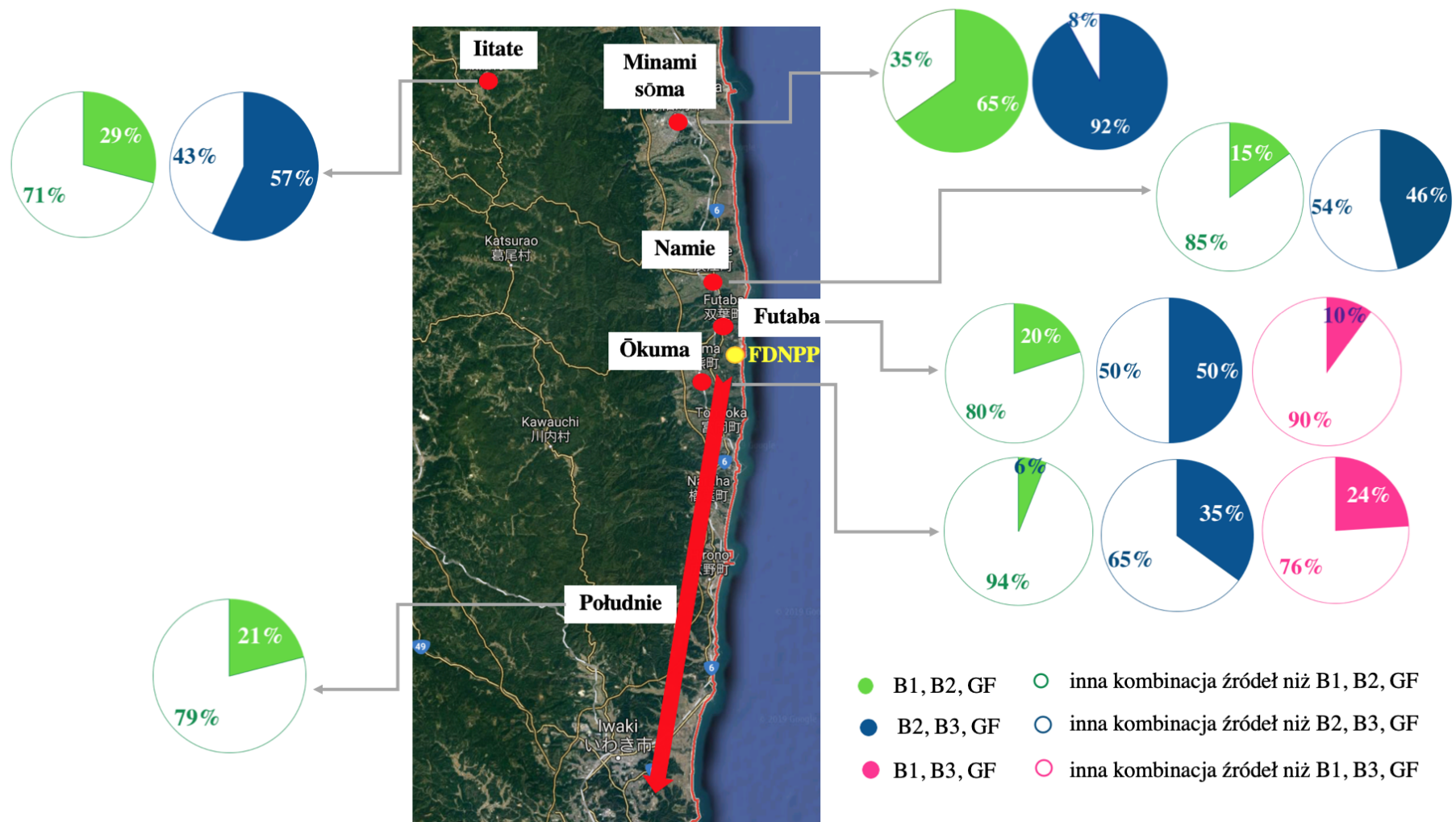
Na podstawie wyników badań własnych (rozdz. 2.1.3 oraz 2.2.1) i ich interpretacji (rozdz. 3.1.1) do wykonania powyższych analiz wybrano wyniki związane z materiałem naniesionym, jako materiałem badawczym, skupiającym największą liczbę śladów izotopowych pochodzących z FDNPP, zarówno pod względem jakościowym jak i ilościowym. Wyniki te zostały zaczerpnięte z publikacji Yamamoto et al. (2014) [105] (nie są znane jakiegokolwiek inne publikacje zawierające tak duży pakiet informacji dotyczący aktynowców w środowisku lądowym). Miejsca poboru próbek rozmieszczone były wzdłuż równiny Hamadōri z jednym wyjątkiem, którym była miejscowość Iitate położona w kierunku północno - zachodnim od FDNPP, pomiędzy górami Abukuma (rys. 3.24). Oczywiście, można by było zadać pytanie czy relatywnie niewielki obszar poboru próbek nie dyskwalifikuje tego typu analiz i czy w związku z tym wyniki nie będą obarczone cechami lokalności. Tu jednak, możemy posłużyć się wcześniejszymi wnioskami z przeprowadzonej dyskusji, mówiącymi o zredukowanym zasięgu aktynowców w porównaniu do zasięgu pierwiastków lotnych. Z drugiej strony, obszar poboru próbek rozciągał się zarówno na północ jak i na południe od FDNPP, stąd mogły na nim istnieć ślady emisji, które nastąpiły przy różnych warunkach meteorologicznych, w różnym czasie. Pewnym potwierdzeniem, że heterogeniczność śladów FDNPP faktycznie powinna być widoczna na rozważanym terenie jest rys. 3.3, na którym umieszczono zasięgi depozycji następujących w różnych przedziałach czasu.



Rysunek 3.24: Położenie miejscowości w okolicach, których pobierano materiał naniesiony na terenie prefektury Fukushima w latach 2012 - 2013. Mapa przygotowana na podstawie Yamamoto et al. (2014) [105]. Dane mapy ©2018, Google, ZENRIN.

Jednym z najbardziej spektakularnych wyników przeprowadzonych analiz, było odkrycie, że w rozpatrywanym materiale badawczym, wyselekcjonowanym jako nośnik śladów aktywności pochodzących z rdzeni reaktorów FDNPP (frakcja GF osiągała maksymalnie 4.1 % dla ^{238}Pu , 3SM, rozdz. 2.2.2), pobranym systematycznie od 46 km na południe do 23 km na północ i 38 km na północny zachód, nie współlistnieją jednocześnie ślady rozważanych aktywności (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{242}Cm , $^{243+244}\text{Cm}$) pochodzące z bloku nr. 1, 2 i 3 FDNPP. Wynik ten został potwierdzony zarówno przy zastosowaniu modelu dla 4 współlistniejących źródeł (4SM) w zestawieniu: blok nr. 1, 2, 3 i GF jak i 3 źródeł (3SM) w zestawieniu: blok nr. 1, 2, 3 przy założeniach opisanych w rozdz. 2.2.2. Oznacza to, że warunki meteorologiczne podczas uwolnień aktywności z trzech bloków FDNPP (rozszerzenia obudowy bezpieczeństwa bloków nr. 1, 2, 3 odpowiednio 12, 15 i 14 marca 2011, rozdz. 1.1.3) nie powtórzyły się, a w związku z tym, depozycje aktywności z każdego reaktora osobno nie były ze sobą w żaden sposób skorelowane.

Z uwagi na powyższy wniosek (brak jednocześnie izotopowych śladów 3 reaktorów), w rozdz. 2.2.2 rozpatrywano również współlistnienie kombinacji dwóch z trzech reaktorów FDNPP oraz GF (szczegóły, rozdz. 2.2.2). Stosując takie podejście udało się udowodnić istnienie izotopowych śladów wybranych kombinacji źródeł w 52 % rozważanych przypadków. Na rys. 3.25 pokazano wyniki analiz uzupełniając je o geograficzne położenie miejsc, wokół których pobierano próbki (dane z pracy Yamamoto et al. (2014) [105]). Na podstawie prezentowanych rezultatów można wnioskować, że najczęściej identyfikowano ślady źródeł w kombinacji: blok nr. 2, blok nr. 3 i GF zaś najrzadziej blok nr. 1, blok nr. 3 i GF. Statystycznie największą frakcją ^{238}Pu i najbardziej powszechną, była frakcja pochodząca z reaktora bloku nr. 2, zaś najmniejsza frakcja pochodziła z bloku nr. 3 (pomijając frakcję związaną z GF). Znalazło to swoje uzasadnienie w wynikach symulacji uwolnień izotopów do atmosfery (tab. 1.3). Aktywność wyemitowanego ^{238}Pu z bloku nr. 2 została oszacowana na poziomie 10^{10} Bq zaś z bloku nr. 3 na poziomie o dwa rzędy wielkości niższym. Ułożenie geograficzne wyników analiz, pozwala odnieść się do chronologii zdarzeń. Na obszarach położonych najbliżej FDNPP (Futaba, Ōkuma) istnieją ślady reaktorów FDNPP i GF we wszystkich trzech z rozważanych kombinacji (o tym ile przypadków zostało wyjaśnionych w oparciu o daną kombinację informuje procent znajdujący się na wykresie kołowym rys. 3.25). Jest to wniosek dość intuicyjny, gdyż rozważany obszar musiał być miejscem „szybkiej” depozycji aerozoli, zachodzącej głównie pod wpływem siły grawitacji. Aktywności oznaczone dla obszarów położonych na południe od FDNPP (Południe), według modelu 3SM, należy identyfikować jedynie z blokiem nr. 1 i blokiem nr. 2. Konfrontując ten wynik z opracowaniem przygotowanym przez IAEA [13] (rys. 3.3) bazującym na pracach Nagai et al. (2012) [157] oraz raporcie MEXT (2011) [158] pokazującym m.in. kierunki wiatru i obszary depozycji z przypisanym okresem kiedy do niej doszło widać, że istotny wpływ na obszar rozciągający się na południe od FDNPP miała depozycja z dnia 15.03.2011, tego samego dnia, którego w godzinach porannych doszło do uwolnienia radioizotopów z bloku nr. 2. Przesuwając się w kierunku północnym od FDNPP, kombinacja śladów pochodzących z bloków nr. 2 i 3 oraz GF staje się dominującą pomimo, że również wzrasta liczba rozwiązyanych przypadków w oparciu o kombinację: blok nr. 1, blok nr. 2 i GF. W obu kombinacjach oprócz GF stałym elementem jest blok nr. 1 FDNPP. Znow wracając do wyników IAEA (rys. 3.3) możemy wnioskować, że w kierunku północnym nastąpiła depozycja 12.03.2011, tego dnia kiedy zarejestrowano wybuch wodoru i rozszerzenie obudowy bezpieczeństwa w bloku nr. 1.

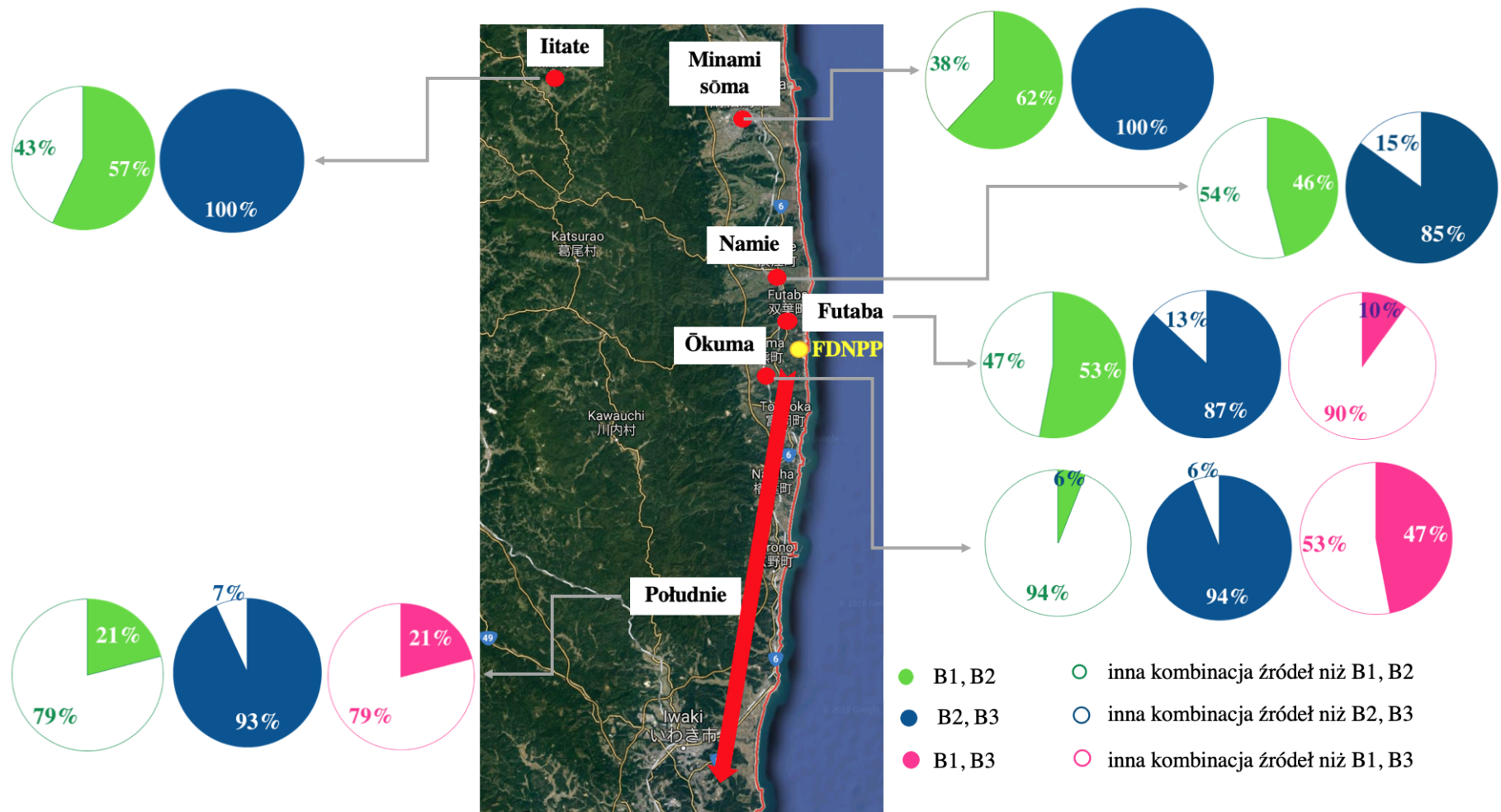


Rysunek 3.25: Zestawienie procentowych udziałów konkurencyjnych 3 - elementowych kombinacji źródeł izotopowych w zbiorze wyników stężeń aktywności ^{238}Pu opublikowanych przez Yamamoto et al. (2014) [105] dla próbek materiału naniesionego. Procentowe udziały oszacowano na podstawie wyników z 3SM (rozdz. 2.2.2).

procenty - odnoszą się do liczby przypadków spośród całego rozważanego zbioru wyników (dla jednego z sześciu wskazanych obszarów prefektury Fukushima), w których stwierdzono obecność śladów z 3 wybranych źródeł izotopowych; B1 - blok nr. 1 FDNPP, B2 - blok nr. 2 FDNPP, B3 - blok nr.3 FDNPP

Pominięcie GF jako elementu kombinacji źródeł izotopowych i zmiana stopnia modelu nSM z 3 na 2 (rozdz. 2.2.2) zaowocowało kolejnymi ważnymi wynikami. Tym razem model 2SM oparto o zależności pomiędzy dwoma izotopami tj. ^{238}Pu i ^{242}Cm , reprezentującymi w sposób jednoznaczny FDNPP (rozdz. 3.1.1). Dwieelementowe kombinacje źródeł izotopowych ze zbioru trzech reaktorów FDNPP pozostały takie jak w modelu 3SM. Aż 92 % rozważanych przypadków znalazło swoje wyjaśnienie, przy czym dla ok. 60 % z nich pozytywne wyniki otrzymano jednocześnie dla dwóch konkurencyjnych kombinacji źródeł izotopowych. Analiza pokazała miażdżącą dominację wariantu, gdzie blok nr. 2 i 3 były źródłami izotopowymi. Na podstawie rys. 3.26 można wnioskować, że ślady obydwu reaktorów znajdują się w środowisku lądowym zarówno w kierunku północnym jak i południowym od FDNPP. Opierając się tylko na tej kombinacji, można wyjaśnić 100 % rozpatrywanych przypadków dla okolic miejscowości Iitate i Minamisōma. Na pytanie dlaczego akurat ta kombinacja jest tak dominującą na tym obszarze, odpowiedzią są tak jak powyżej warunki meteorologiczne. W ciągu dnia 15.03.2011 (rozszerzenie obudowy bezpieczeństwa w bloku nr. 2) kierunek wiatru zmieniał się z południowo - zachodniego na północno - zachodni powodując poszerzenie pola depozycji suchej. Wtedy też miał miejsce opad deszczu, który w sposób bardziej efektywny oczyścił atmosferę z aerozoli wyemitowanych z FDNPP, powodując tym samym silne ukierunkowanie maksymalnych wartości depozycji radionuklidów w środowisku.

Spostrzeżeniem wartym powtórzenia i podkreślenia jest fakt, że 8 % wyników, dla których pochodzenia aktywności nie udało się wyjaśnić w oparciu o mieszaninę śladów przy zastosowaniu 2SM, można jednoznacznie przypisać konkretnym, pojedynczym reaktorom FDNPP. Ma to swoje znaczenie w kontekście uzasadnienia wyników otrzymanych przy użyciu nSM. Dla nierozwiązanych przypadków z okolic Namie (n=2), ^{238}Pu pochodził z bloku nr. 2 FDNPP. Podobna sytuacja (n=4) miała miejsce w okolicach Futaba i na terenach położonych na południe od FDNPP (n=1). Dla miejscowości Ōkuma, jedyny niewyjaśniony wynik można utożsamiać z blokiem nr. 3 FDNPP. Kolejny raz, została uwidoczniła dominacja śladów pochodzących z reaktora bloku nr. 2, która wynikała z dużej zmienności warunków atmosferycznych skorelowanych z uwolnieniem radionuklidów do atmosfery.



Rysunek 3.26: Zestawienie procentowych udziałów konkurencyjnych 3 - elementowych kombinacji źródeł izotopowych w zbiorze wyników stężeń aktywności ^{238}Pu opublikowanych przez Yamamoto et al. (2014) [105] dla próbek materiału naniesionego. Procentowe udziały oszacowano na podstawie wyników z 2SM (rozdz. 2.2.2).

procenty - odnoszą się do liczby przypadków spośród całego rozważanego zbioru wyników (dla jednego z sześciu wskazanych obszarów prefektury Fukushima), w których stwierdzono obecność śladów z 2 wybranych źródeł izotopowych; B1 - blok nr. 1 FDNPP, B2 - blok nr. 2 FDNPP, B3 - blok nr.3 FDNPP

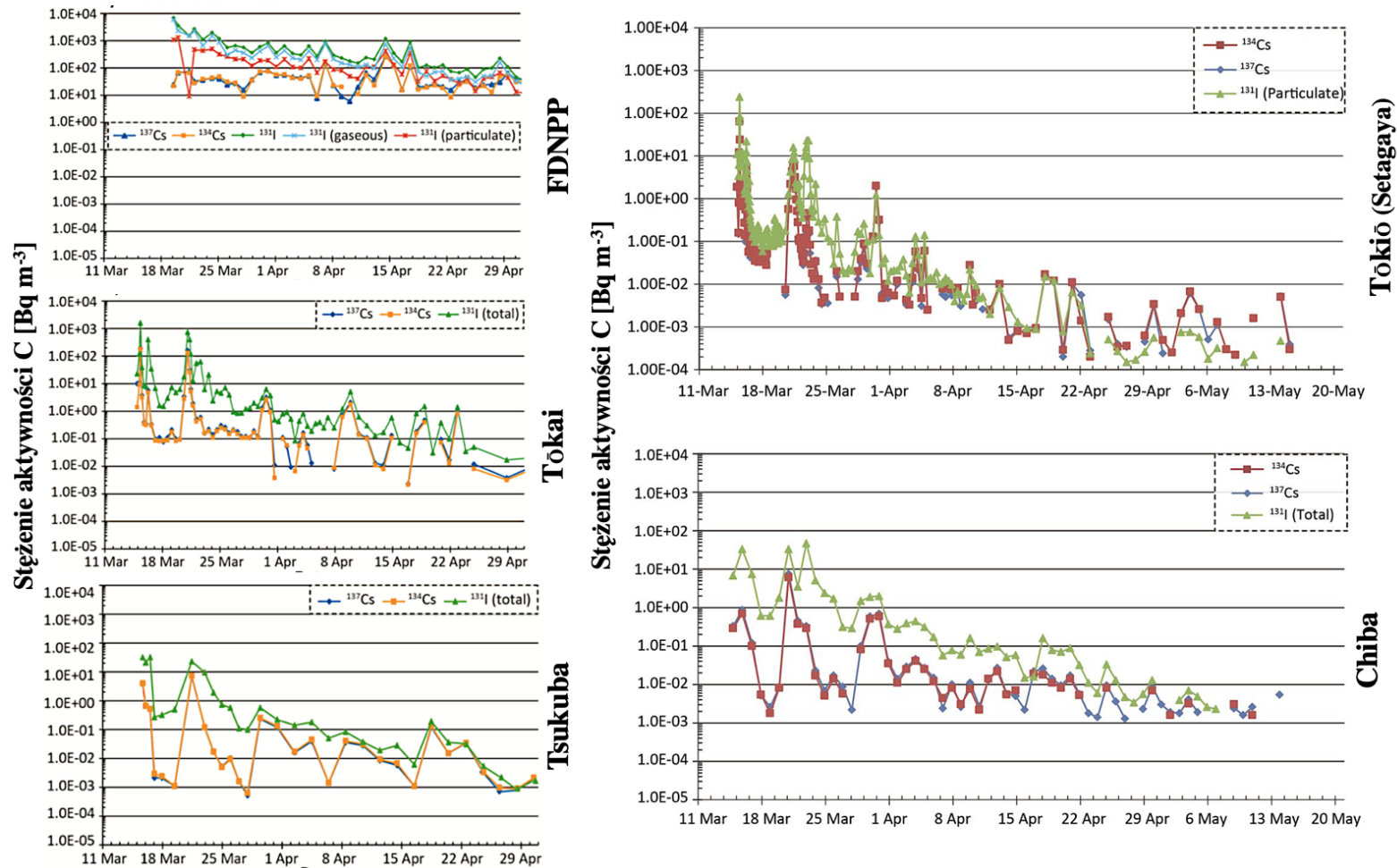
Dodatkowo przeprowadzono pierwszą próbę wyjaśnienia pochodzenia śladów aktywności uwzględniając niejednorodności paliwa jądrowego w poszczególnych reaktorach FDNPP. W tym celu użyto 2SM, w takich samych konfiguracjach, jak to było opisane powyżej a niejednorodności ustalono na poziomie $\pm 5\%$ wartości średniej stosunków aktywności izotopów (rozdz. 2.2.2). Oczywiście nadmienić należy, że wartości te nie są wynikiem żadnych symulacji, a jedynie założeniem dla przetestowania modelu, działającego na przedziałach zmienności stosunków aktywności wybranych izotopów. Z drugiej strony, nie są to wartości niemożliwe do otrzymania w paliwie jądrowym. Uzyskane wyniki, w znacznej mierze odpowiadały tym, które otrzymane były przy użyciu 2SM dla paliwa jednorodnego, z tą jednak różnicą, że oprócz wielkości frakcji przynależnych konkretnym kombinacjom źródeł izotopowych i liczby wyników, dla których dana kombinacja znalazła uzasadnienie dostajemy też prawdopodobieństwo wystąpienia danej kombinacji, które jest pokłosiem zastosowania przedziałów zmienności założonych stosunków izotopowych. Dla całego zbioru danych, największe prawdopodobieństwo egzystencji w próbkach materiału naniesionego, miała kombinacja źródeł: blok nr. 2 i 3 FDNPP (średnia 96 %, mediana 98 %) zaś najmniejsza kombinacja: blok nr. 1 i 3 (średnia 76 %, mediana 95 %) (tab. 2.21). Pierwsza z wymienionych kombinacji, dominowała na północ od FDNPP (Minamisōma, Iitate, Namie) i konkurowała z układem źródeł: blok nr. 1 i 2 FDNPP. Teren Futaba i Ōkuma oraz położony na południe od FDNPP, to obszary, gdzie według otrzymanych wyników, mogą istnieć ślady wszystkich trzech z wymienionych kombinacji, oczywiście realizowanych w różnych zakresach, definiowanych przez liczbę rozwiązanych przypadków. Niewątpliwie największy i też najbardziej prawdopodobny udział, został przypisany reaktorowi bloku nr. 2 FDNPP (rozdz. 2.2.2).

Dla przedstawienia pełnego opisu pochodzenia śladów aktywności z FDNPP w środowisku, sprawdzono, w których próbkach mogą istnieć ślady pojedynczych reaktorów (na podstawie stężeń aktywności i stosunku aktywności ^{238}Pu i ^{242}Cm). Narzucenie takiego filtra na wyniki pokazało, że dla 43 % próbek (zwłaszcza z okolic Minamisōma i Ōkuma) jedynym źródłem może być reaktor bloku nr. 1 FDNPP, dla 11 % reaktor bloku nr. 2 i dla 4 % reaktor bloku nr. 3 (rys. 2.22 - 2.24). Jest to efekt zupełnie przeciwny do tego obserwowanego we wcześniejszych rozważaniach (i z dużym prawdopodobieństwem wg. autora nieprawdziwy), gdzie wykazano niebudzącą wątpliwości dominację bloku nr. 2. Dodatkowo wystąpienie wyników singletowych reaktora nr. 1 na południu nie zgadza się z opracowaniami przedstawionymi m.in. przez IAEA [13] (rys. 3.3). Niewątpliwie rozwiązanie tej sytuacji, przyniosłoby rozważenie warunków meteorologicznych w większej rozdzielczości czasowej.

W podsumowaniu tego rozdziału należy więc podkreślić, że oprócz faktu braku stwierdzonej koegzystencji śladów aktywności jednocześnie z trzech reaktorów FDNPP, rozstrzygnięcie pochodzenia izotopów jest trudne. Warianty kombinacji izotopowych 2 - elementowych nie tylko konkurują ze sobą, ale także z możliwym stanem, w którym źródłem aktywności jest tylko jeden reaktor. Niemniej jednak liczby rozwiązanych przypadków (2SM) uzupełnione o prawdopodobieństwo wystąpienia danej kombinacji (2SM przypadek z niejednorodnością paliwa), w nawiązaniu do warunków meteorologicznych (w odpowiedniej rozdzielczości czasowej) mają potencjał na oddzielenie przypadków uważanych za nieprawdziwe.

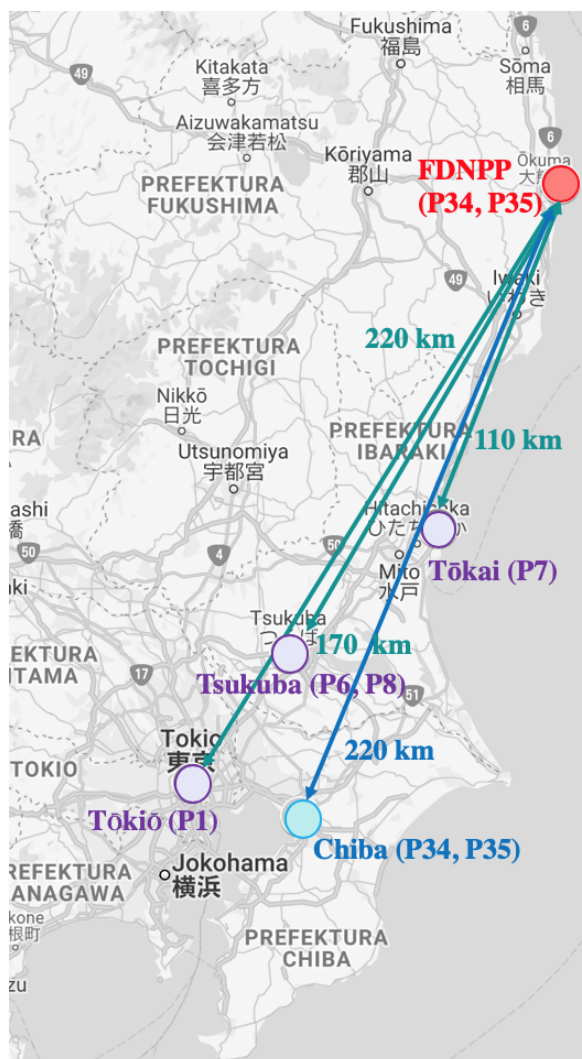
3.2 Monitorowanie skażeń wewnętrznych - pomiary *in vivo*

W wyniku awarii FDNPP do atmosfery zostało uwolnione ok. 160 PBq ^{131}I i ok. 15 PBq ^{137}Cs oraz porównywalnie ^{134}Cs (tab. 1.3). Oczywiście ze względu na złożoność całej awarii, uwolnienie nie było procesem chwilowym ani też liniowym, ale przebiegało zgodnie z chronologią wydarzeń w reaktorach FDNPP. Pierwsze wyniki stężenia aktywności ^{131}I oszacowane na podstawie pomiarów wykonanych na terenie FDNPP, pomiędzy 19 - 23.03.2011, wynosiły $10\,000\text{ Bq m}^{-3}$ (suma frakcji gazowej i aerozolowej) sukcesywnie malejąc do poziomu ok. 100 Bq m^{-3} w połowie kwietnia 2011 r. W tym samym czasie poziom izotopów Cs fluktuował w przedziale od 100 Bq m^{-3} do 10 Bq m^{-3} [13]. To relatywnie późne próbkowanie, było wynikiem zniszczenia stacji poboru aerozoli na wschodnim wybrzeżu wyspy Hōnsiu pod wpływem tsunami. Stężenie aktywności uwolnionych izotopów zmieniało się wraz z odległością i wynikało z „rozcieńczenia” izotopów w atmosferze jak i zachodzenia procesów oczyszczania atmosfery. Efekt ten łatwo zaobserwować na podstawie wykresów zestawionych na rys. 3.27 [13], przygotowanych dla miejsc położonych na południowy zachód od FDNPP, w odległości ok. 110 km (Tōkai), 170 km (Tsukuba) i 220 km (Tōkiō, Chiba). Maksymalne stężenie aktywności ^{131}I , zarejestrowane między 15.03.2011 a 18.03.2011 dla Tōkai, wynosiło ok. 1600 Bq m^{-3} , dla Tsukuba ok. 50 Bq m^{-3} a dla Tōkiō i Chiba znajdujących się w tej samej odległości od FDNPP, odpowiednio 300 Bq m^{-3} (tylko ^{131}I w formie aerozolowej) i 50 Bq m^{-3} . Wyniki pokazują, że trend stężenia aktywności izotopów Cs podążał za trendem ^{131}I (rys. 3.27). Obecność uwolnionych radionuklidów w powietrzu, była potencjalnym źródłem skażeń zewnętrznych i wewnętrznych, osób przebywających na terenie Japonii. W IFJ PAN przeprowadzono 6 pomiarów takich osób, przy użyciu SCC, dla weryfikacji sztucznych izotopów w ich organizmach oraz określenia poziomu skażeń wewnętrznych.



Rysunek 3.27: Stężenia aktywności izotopów ^{131}I oraz ^{134}Cs i ^{137}Cs w powietrzu oszacowanych na podstawie pomiarów wykonanych na terenie FDNPP, Tōkai, Tsukuba, Tōkiō i Chiba [13].

Zaprezentowane powyżej wyniki i wykresy (rys. 3.27) są o tyle szczególne i ważne, gdyż dotyczą miejsc, w których przebywali pacjenci poddani pomiarom w SCC. Uwzględniając je, można lepiej scharakteryzować i zinterpretować otrzymane dane (tab. 2.28 i 2.29). Położenie miejsc pobytu pacjentów na terenie Japonii zostało zaznaczone na rys. 3.28.



Rysunek 3.28: Położenie miejsc pobytu pacjentów na terenie Japonii względem FDNPP poddanych pomiarom w SCC .

Obecność ^{131}I powyżej MDA stwierdzono nie u wszystkich pacjentów, a jedynie u P1, P6 i P8. Uzasadnienie tego faktu, można znaleźć zarówno w czasie połowicznego zaniku ^{131}I (efektywny czas połowicznego zaniku ^{131}I w tarczycy 7.1 dnia [22]) jak i czasie przebywania pacjenta w Japonii/narażenia na wchłonięcie izotopów promieniotwórczych oraz dacie wykonania pomiaru. Pacjent P1, przebywał w Tōkiō i piątego dnia po awarii opuścił Japonię a pomiar nastąpił 8 dni później. Zarówno stężenie aktywności ^{131}I w powietrzu (kilkaset Bq m^{-3}) jak i długość pobytu oraz czas pomiaru, umożliwiły identyfikację tego izotopu i oznaczenie aktywności wynoszącej $73 \pm 10 \text{ Bq}$. Takiej możliwości nie było w przypadku pacjenta P7. Pomimo tego, że przebywał on w Tōkai gdzie stężenie ^{131}I w powietrzu było kilkadziesiąt razy większe niż w Tōkiō (Tōkai leży mniej więcej w połowie drogi pomiędzy Tōkiō a FDNPP), to pomiar po 36 dniach tj. po ok. 5 efektywnych czasach połowicznego zaniku ^{131}I w tarczycy, pozwolił

jedynie na ustaleniu, że aktywność ^{131}I była mniejsza niż 2.3 Bq. Zarówno pacjent P6 jak i P8 przebywali w Tsukuba, odpowiednio przez 10 dni i 9 dni od awarii FDNPP. Niemniej jednak pomiar pierwszego nastąpił 17 dni po powrocie zaś drugiego po 37 dniach. Wynik aktywności ^{131}I dla pacjenta P6 wyniósł 50.1 ± 7.2 Bq i był ok. 20 razy większy od tego otrzymanego dla pacjenta P8 (2.48 ± 0.72 Bq). Okazało się również, że pomimo oszacowania wyników na tą samą datę pomiaru (wprowadzając poprawkę na rozpad ^{131}I i uwzględniając biologiczny czas zaniku ^{131}I w tarczycy) to ten otrzymany dla pacjenta P8 jest 2.5 raza mniejszy niż dla P6. Może mieć to związek z cechami osobniczymi pacjentów jak np. płeć, wielkość tarczycy, etc. Pomiary pacjentów P34 i P35 pozwoliły ustalić, że aktywności ^{131}I w tarczycach były mniejsze niż 2 Bq, pomimo tego, że obaj pacjenci byli mieszkańcami Japonii i okresowo przebywali na terenie strefy wyłączenia. Jednak daty ich pomiarów w SCC, przypadające na pierwszy kwartał 2012 r., zdecydowanie wykluczyły możliwość wykrycia w/w izotopu. Dla uzupełnienia informacji należy dodać, że w widmach pacjentów z grupy kontrolnej (mieszkańców Krakowa), których pomiary odbywały się mniej więcej w tym samym czasie co pacjentów przebywających w Japonii, nie zidentyfikowano ^{131}I .

W przypadku izotopów Cs jest nieco inaczej. ^{134}Cs wykryto w organizmach pacjentów P6, P8 i P35 zaś ^{137}Cs u pacjentów P6 i P7. Wszystkie wyniki były na poziomie kilkudziesięciu Bq. Warto zauważyć, że obydwa izotopy jednocześnie zostały zidentyfikowane jedynie u pacjenta P6, przy czym stosunek aktywności ^{134}Cs i ^{137}Cs wynosił 1.65 ± 0.70 i odbiegał od wartości charakterystycznej dla FDNPP, która była bliska jedności. Wytlumaczeniem tego rezultatu może być duża niepewność względna wyniku, sięgająca 42 %. Wynik ^{134}Cs dla pacjenta P35 wynoszący 40 ± 25 Bq (tab. 2.29) został potwierdzony przez badania prowadzone w NIRS (Chiba, Japonia). Pomiar tego samego pacjenta wykonany w spektrometrze całego ciała w Japonii, pozwolił oszacować aktywność ^{134}Cs na poziomie 49.3 ± 5.9 Bq (korespondencja prywatna) pokazując jednocześnie doskonałą zgodność obu metodyk w tym przypadku. To na co warto zwrócić uwagę, to fakt, że pobyt pacjentów P34 i P35 na terenach strefy wyłączenia wokół FDNPP, nie spowodował większych skażeń wewnętrznych izotopami Cs niż te, które zostały oznaczone dla pozostałych pacjentów tej grupy (tab. 2.29). Tak jak poprzednio, dla porównania opracowano wyniki grupy odniesienia i nie stwierdzono obecności ^{134}Cs , ewidentnego śladu relatywnie „świeżego” źródła izotopowego. W jednym przypadku (P5) zanotowano ^{137}Cs o aktywności 68 ± 19 Bq. Nie należy jednak wiązać tego faktu z transportem mas powietrza z Japonii, z uwagi na brak sygnału od ^{134}Cs i ^{131}I w widmie pacjenta. Prawdopodobnie jest to efekt związany z dietą np. spożywaniem grzybów, które mogły pochodzić z terenów skażonych w wyniku awarii w Czarnobylu (w Polsce: woj. białostockie, opolskie).

Otrzymane dane dla grupy osób przebywających w Japonii, posłużyły do oszacowania obciążających dawek skutecznych (zwanych dalej dawkami) od rozważanych izotopów. Przy szacowaniu przyjęto konserwatywne podejście zakładając, że wyznaczona aktywność danego izotopu w organizmie pacjenta, została zdeponowana w ciągu jednego wniknięcia drogą oddechową oraz że absorpcja danego nuklidu w płucach następowała szybko w przypadku ^{131}I oraz powoli w przypadku izotopów Cs. Dawki od ^{131}I zostały policzone na dzień 14.03.2011 zaś dla izotopów Cs na dzień pomiaru. Z uwagi na inny (ciągły) charakter pobytu w Japonii pacjentów P34 i P35 pominięto dla nich szacowanie dawki od ^{131}I .

Wszystkie wyniki plasowały się na poziomie μSv (tab. 3.2), co oznacza, że dawka jaką pacjenci otrzymali od wniknięcia rozważanych radionuklidów do ich organizmu, nawet przy bardzo niesprzyjających założeniach, jest niewielka i ok. tysiąc razy mniejsza od przyjętej średniej rocznej dawki od źródeł naturalnych dla statystycznego człowieka i wynoszącej

2.4 mSv [159].

Tablica 3.2: Obciążające dawki skuteczne pochodzące od ^{131}I , ^{134}Cs i ^{137}Cs oszacowane na podstawie pomiarów pacjentów w SCC.

Kod	H(τ) [μBq]		
	^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs
P1	1.44 \pm 0.22	<0.59	< 1.2
P6	3.90 \pm 0.56	2.9 \pm 1.0	3.48 \pm 0.74
P7	<0.57	<0.062	1.29 \pm 0.47
P8	1.23 \pm 0.36	0.83 \pm 0.62	1.37 \pm 0.78
P34		<0.79	<1.8
P35		1.43 \pm 0.77	<1.3

* dawki nie zostały oszacowane z uwagi na fakt, że pomiary odbyły się w pierwszym kwartale 2012 r. (tab. 2.22).

Izotopy, które zostały zweryfikowane u pacjentów przebywających w Japonii, mogły zostać wchłonięte zarówno drogą oddechową (obecność uwolnionych izotopów z FDNPP w powietrzu, rys. 3.27) jak i pokarmową. Depozycja radionuklidów w środowisku spowodowała skażenie gleby, wód, roślin przyczyniając się do przenoszenia uwolnionych izotopów z FDNPP pomiędzy kolejnymi elementami łańcucha pokarmowego człowieka. Początkowo, to izotopy wprowadzane do organizmów drogą oddechową stanowiły główne źródło skażeń wewnętrznych. Z czasem jednak, kiedy atmosfera ulegała oczyszczeniu, to droga pokarmowa zaczęła odgrywać dominującą rolę. Skażenia pojawiające w produktach spożywczych, jak i procedury/akcje ich wykrywania oraz limity dla stężeń aktywności poszczególnych izotopów w produktach spożywczych nie są przedmiotem niniejszego opracowania. Niemniej jednak zainteresowani tą kwestią czytelnicy, mogą znaleźć w/w informacje m.in. w pracach [13], [160]–[163].

Przegląd literatury pokazał, że nie ma zbyt wielu danych z terenu Japonii, z którymi można by było porównać prezentowane w niniejszym opracowaniu wyniki. Decydowały o tym priorytety, cel i możliwości wykonywania badań (jak największa liczba pomiarów przy zniszczonej infrastrukturze badawczej, zwłaszcza na obszarze prefektury Fukushima) w tym bardzo trudnym czasie. Duży nacisk kładziono na identyfikację i analizę skażeń zewnętrznych. Wykorzystanie spektrometrów całego ciała miało dostarczyć informacji o istnieniu lub braku skażenia wewnętrznego czyli stanowić swego rodzaju „gruby” filtr [13]. Podsumowanie prowadzonych badań na terenie prefektury Fukushima, uwzględniające wyniki związane z pracownikami FDNPP, zostało przedstawione w raporcie IAEA z 2015 r. [13]. Jednym z ważniejszych wniosków jest stwierdzenie, że dominująca część oszacowanej dawki pochodziła od ^{131}I . Seria 15 409 trzyminutowych pomiarów (obarczonych wysokimi limitami detekcji) mieszkańców prefektury Fukushima, wykonanych przy użyciu spektrometrii całego ciała, pomiędzy 27.06.2011 do 31.01.2012 pokazała, że w 99.9 % przypadków oszacowana dawka była mniejsza niż 1 mSv [13]. Bardziej szczegółowe badania dotyczące ok. 330 przypadków ludzi, którzy zostali wysłani w różne miejsca na terenie prefektury Fukushima pomiędzy kwietniem a listopadem 2011 r. i po dwóch miesiącach od opuszczenia tego terenu zostali poddani pomiarom, wykazały że poziom izotopów Cs w ich organizmach fluktuował pomiędzy 31.5 Bq a 106 Bq dla ^{134}Cs oraz pomiędzy 43.7 Bq a 97.3 Bq dla ^{137}Cs , podczas gdy dla ^{131}I (badania osób wysłanych w kwietniu 2011 r. do prefektury Fukushima) aktywność zmieniała się w granicach od 57.8 Bq do 87.9 Bq [164]. Dodatkowo, oszacowane na podstawie tych wyników, dawki na poziomie μSv potwierdzają i uzasadniają rezultaty (rząd wielkości) badań własnych. Poza tym,

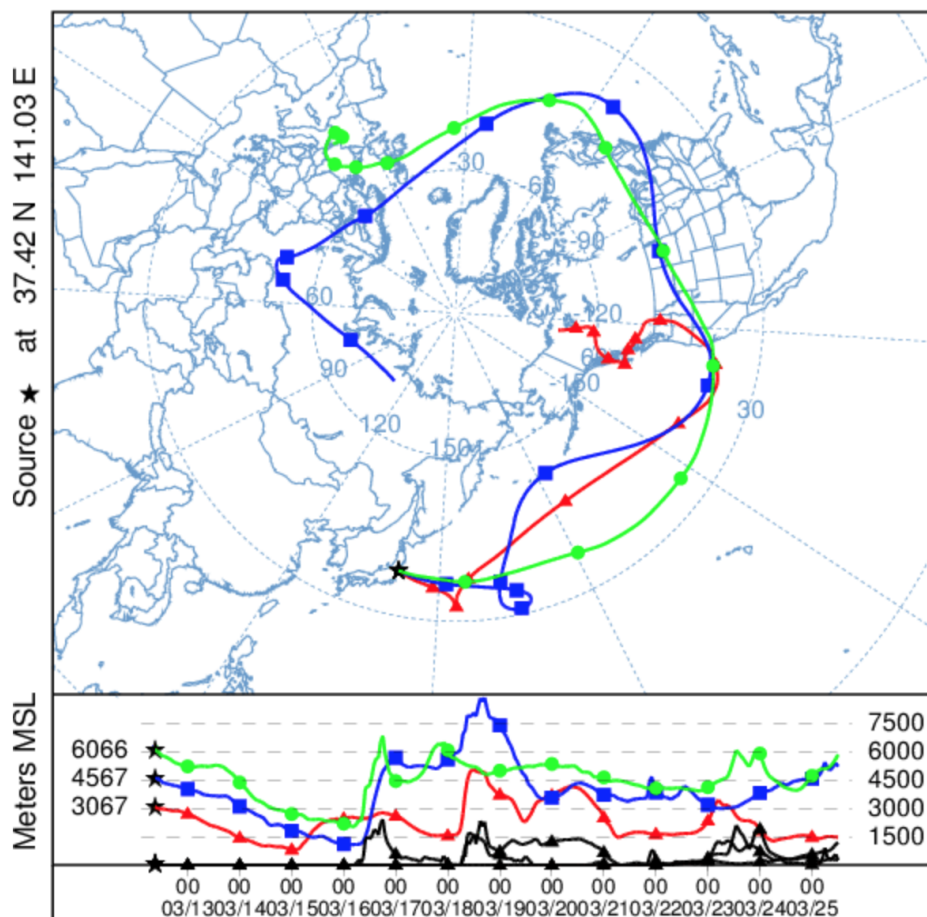
również został potwierdzony fakt, że nie zawsze dokonywano jednoczesnej identyfikacji ^{134}Cs i ^{137}Cs podczas pomiarów.

Uprzedzając też potencjalne pytanie czytelnika czy te 6 przypadków zmierzonych w SCC IFJ PAN to dużo czy mało, oczywiście nie wnikając w wartość naukową/poznawczą wykonanych badań, bo ona jest poza dyskusją, można odnieść się do dostępnych danych. Wszystko zależy od skali w jakiej dokonywać będziemy analiz. W przypadku Polski, badaniom poddanych zostało łącznie ok. 16 osób w tym 6 w NCBJ, Świerk (kontakt prywatny, J. Ośko) i 4 w CLOR, Warszawa (kontakt prywatny, G. Krajewska). Zaznaczyć należy, że pomiary w NCBJ zostały wykonane przy użyciu spektrometru całego ciała i na obecność wszystkich izotopów gamma - promieniotwórczych (w dwóch przypadkach zidentyfikowano ^{134}Cs , ślad „świeżego” uwolnienia) zaś w CLOR na obecność izotopów I w tarczycy. Z kolei patrząc na tą kwestię z perspektywy Europy wraz z Kanadą, to łącznie w ramach EURADOS (European Radiation Dosimetry Group) poddano pomiarom w 16 krajach ok. 550 osób po powrocie z Japonii, w tym u 208 stwierdzono obecność izotopów uwolnionych podczas awarii FDNPP (Belgia - 9, Czechy - 8, Finlandia - 1, Francja 76, Grecja - 5, Niemcy - 58, Norwegia - 3, Polska - 7 (w tym wyniki z IFJ PAN), Szwecja - 1, Ukraina - 4, Węgry - 2, Wielka Brytania - 1, Włochy - 32, Kanada - 1) [165]. Liczba wykonanych analiz w danym kraju, uzależniona była od liczby członków społeczności przebywającej w Japonii oraz możliwości jej opuszczenia w 2011 r. Wyniki opracowane na podstawie tych badań, dla ^{131}I mieściły się w zakresie od 6 Bq do 890 Bq, dla ^{134}Cs od 24 Bq do 637 Bq, a dla ^{137}Cs od 17 Bq do 670 Bq. Większość uzyskanych danych, dotyczyła osób przebywających na wschodnim wybrzeżu wsipy Hōnsiu tj. w Tōkiō (36 %), Senadai (16 %) i w Fukushima (9 %) [165].

3.3 Dalekozasięgowy transport izotopowych śladów awarii FDNPP w powietrzu

Intencyjne i nieintencyjne działania/procesy zachodzące podczas awarii FDNPP sprawiły, że uwolnione do atmosfery izotopy promieniotwórcze, zostały wyniesione na różne wysokości nad powierzchnię ziemi. Wizualne analizy Tsuruda (2013) [166] dotyczące chmur powstałych w wyniku wybuchów wodoru w FDNPP (fizyczna analiza materiałów cyfrowych), a złożonych z materii makroskopowej i kondensującej pary wodnej, pozwoliły stwierdzić, że ich wysokość zmieniała się w zakresie od kilkudziesięciu do kilkuset metrów. Jednocześnie taka konkluzja daje dość poważny asumpt do przypuszczeń, że musiała istnieć frakcja materii (w stanie gazowym), która została „wstrzyknięta” do atmosfery, na wysokości znacznie wyższe niż te, które były dostępne materii makroskopowej. Taki wniosek jest zarówno warunkiem koniecznym jak i dostatecznym do tego by powstałe w wyniku awarii w FDNPP aerozole, zostały przetransportowane nad Europę (na odległość rzędu 10 000 km) w określonym czasie. Rys. 3.29 przygotowany w oparciu o model HYSPLIT [167], obrazujący transport aerozoli pomiędzy 12.03.2011 (wybuch wodoru w bloku nr. 1 FDNPP) a 25.03.2011, uwzględniający wysokości terenu pokazuje, że efektywny transport aerozoli znad Japonii (przy udziale m.in. prądu strumieniowego) odbywał się m.in. przez północny Atlantyk, północną część USA i południową Kanadę, by następnie przez Islandię i Skandynawię dotrzeć do Europy. Na tej podstawie pierwsze ślady zdarzenia, powinny były być wykrywalne nad kontynentem europejskim ok. 20 - 21.03.2011 a więc 8 - 9 dni po rozszczelnieniu obudowy bezpieczeństwa bloku nr. 2 FDNPP. Należy jednak jeszcze pamiętać o pionowym profilu trajektorii aerozoli (rys. 3.29),

który wskazuje, że te pierwsze markery awarii FDNPP, dotarły do Europy na wysokości powyżej 3000 m. n.p.m. (potwierdziły to m.in. prace Povinec et al. (2013) [6], Lujanienė et al. (2012) [168]) i dopiero procesy fizyczne zachodzące w atmosferze nad kontynentem, szorstkość terenu, etc. powodujące depozycję aerozoli, pozwoliły na wykrycie izotopowych śladów zdarzeń w Japonii w przygrunтовой warstwie powietrza Europy.



Rysunek 3.29: Przebieg wybranych trajektorii mas powietrza mających początek 12.03.2011 r. o godz. 9:00 UTC nad FDNPP oraz pionowy profil wysokości w/w trajektorii. Model: HYSPLIT [167], czas obserwacji trajektorii: 315 godzin, użyte dane meteorologiczne: GDAS.

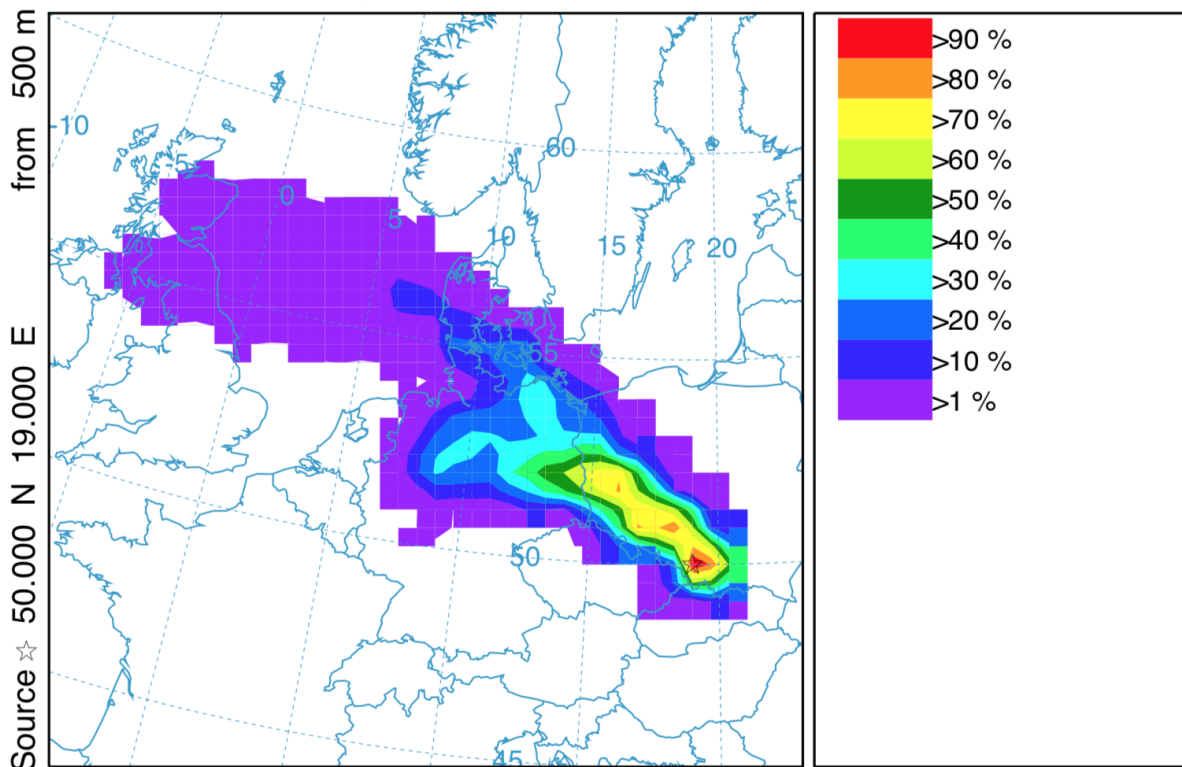
MSL (mean sea level) - wysokość nad poziomem morza; kolorowe krzywe oznaczają trajektorie mające początek na wysokości 3000 m (kolor czerwony), 4500 m (kolor niebieski) i 6000 m (kolor zielony) nad powierzchnią ziemi; krzywa koloru czarnego rejestruje zmianę wysokości terenu, punkty na krzywych - godzina 00:00 UTC każdego dnia

3.3.1 Izotopowe ślady awarii FDNPP w przyziemnej warstwie atmosfery w Krakowie

Laboratorium w IFJ PAN było pierwszym w Polsce, które wykryło izotopowe ślady FDNPP w atmosferze, a jednocześnie jednym z siedmiu, w nieformalnej grupie europejskich laboratoriów Ro5 (Ring of Five), które było w stanie pobrać i wykonać izotopowe pomiary gazowej składowej powietrza [141].

Pierwsze markery zdarzenia zostały zidentyfikowane w filtrach gazowym i aerozolowym eksponowanych pomiędzy 21.03.2011 a 24.03.2011, co zgadza się z wnioskami wpły-

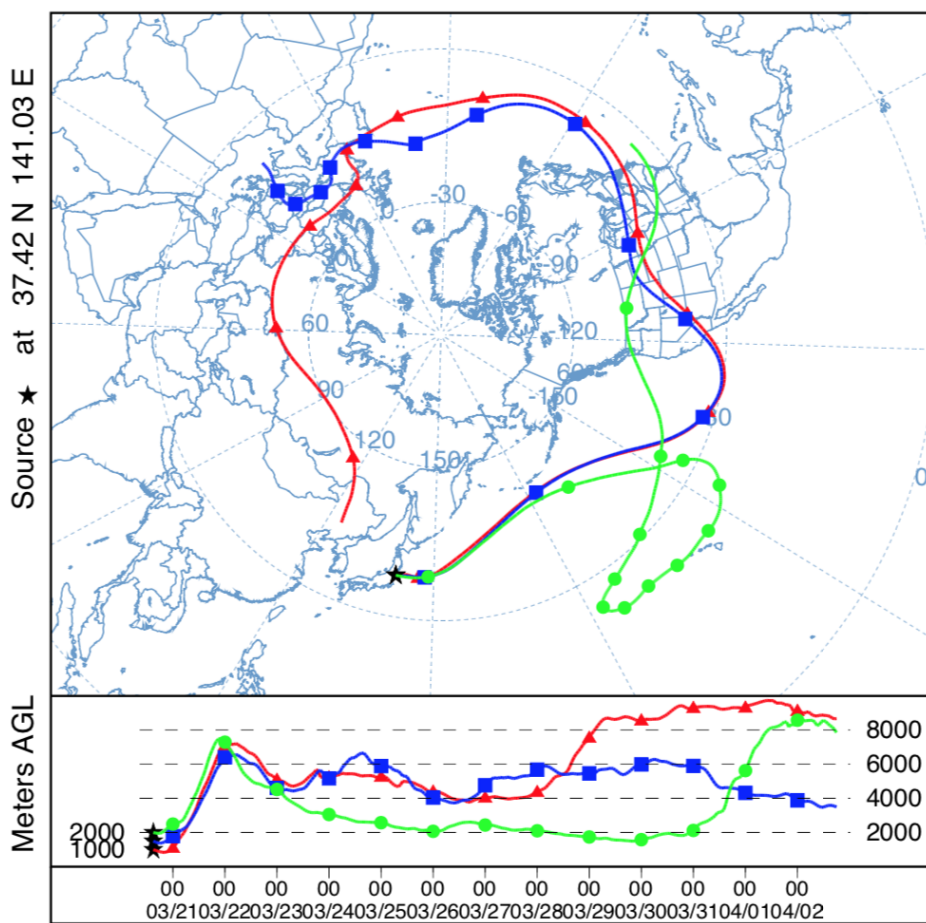
wającymi z symulacji prezentowanej powyżej. Jeśli popatrzymy na to zdarzenie z punktu widzenia rozkładu częstości trajektorii w modelu trajektorii wstecznych (model HYSPLIT [167]), to okaże się, że masy powietrza w w/w okresie nadciągnęły nad południową część Polski tj. Kraków znad północnego zachodu (rys. 3.30), a więc z kierunku, z którego spodziewano się napływu powietrza znad Japonii.



Rysunek 3.30: Rozkład częstości występowania trajektorii mas powietrza przechodzących nad Krakowem na wysokości 500 m nad powierzchnią ziemi (wysokość związana z niepewnością użytego modelu) między 20.03.2011 a 24.03.2011 (model trajektorii wstecznych). Model: HYSPLIT [167], interwał pomiędzy kolejnymi trajektoriami: 3 godziny, czas obserwacji każdej trajektorii: 48 godzin, rozdzielczość użytej siatki: $1^0 \times 1^0$, użyte dane meteorologiczne: GDAS.
skala kolorów - względna liczba trajektorii przechodzących przez daną komórkę siatki do liczby wszystkich trajektorii

Wyniki stężeń aktywności izotopów promieniotwórczych w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie (tab. 2.33), były ok. 200 000 lub ok. 1000 000 razy mniejsze odpowiednio w przypadku ^{137}Cs oraz ^{131}I (suma frakcji gazowej i aerozolowej), w okresie największego maksimum (29 - 30.03.2011), od stężeń aktywności tych radionuklidów zweryfikowanych w powietrzu na terenie FDNPP (rozdz. 3.2), pomiędzy 19 - 23.03.2011. Ponadto warto zauważyć, że struktura profilu danych pochodzących z badań własnych (tab. 2.33), odpowiada strukturze danych z terenu Japonii, zgromadzonych w raporcie IAEA [13] i przedstawionych na rys. 3.27. Dwa dodatkowe maksima (oprócz tego występującego na początku okresu próbkowania) zarejestrowane pomiędzy 20 - 21.03.2011 oraz 29 - 30.03.2011 w Japonii dla izotopów I i Cs ([13]), znalazły swoją odpowiedź w Krakowie, odpowiednio w okresach 3 - 4.04.2011 oraz 15 - 21.04.2011. Argumentów za łączenia tych faktów dostarczają choćby rys. 3.31 oraz 3.32, przy czym dla tego drugiego maksymalny czas śledzenia trajektorii wynoszący 315 godzin (model HYSPLIT) uniemożliwia weryfikację napływu mas powietrza nad południową Polskę. Nie-

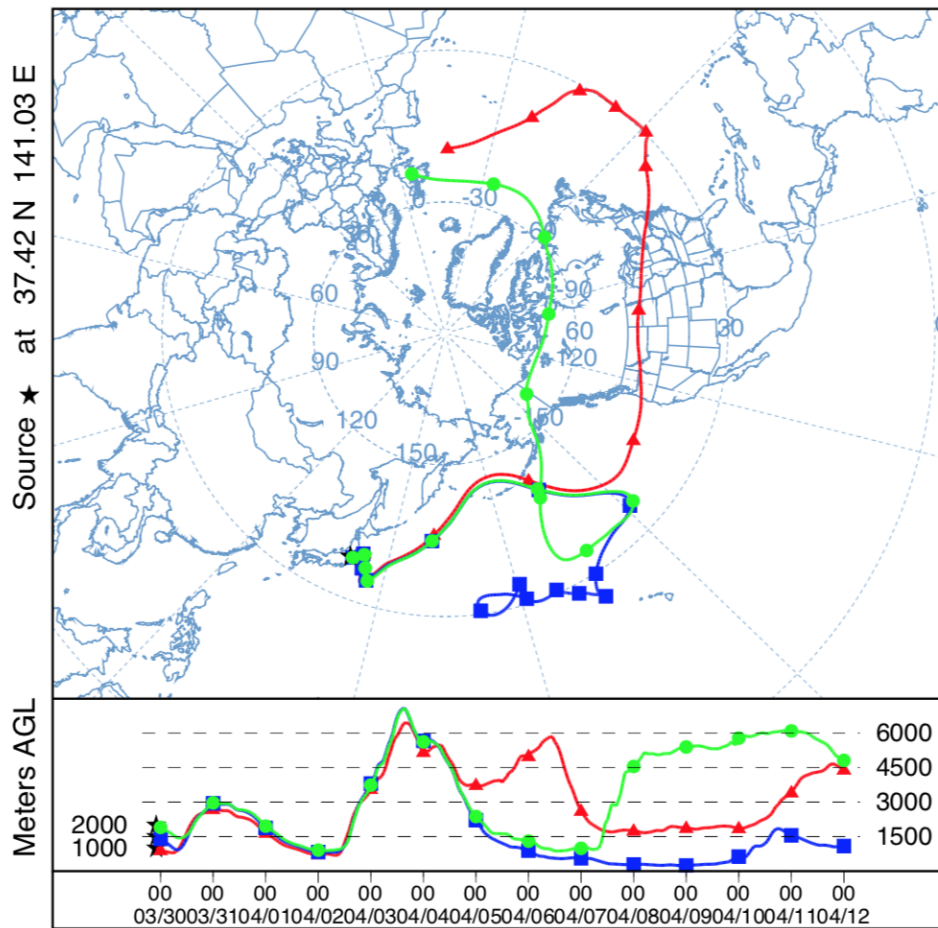
mniej jednak łatwo zaobserwować front powietrza, który zmierzał w kierunku Europy.



Rysunek 3.31: Przebieg wybranych trajektorii mas powietrza mających początek 20.03.2011 r. o godz. 15:00 UTC nad FDNPP oraz pionowy profil wysokości w/w trajektorii. Model: HYSPLIT [167], czas obserwacji trajektorii: 315 godzin, użyte dane meteorologiczne: GDAS.

AGL (above ground level) - wysokość nad poziomem ziemi; kolorowe krzywe oznaczają trajektorie mające początek na wysokości 1000 m (kolor czerwony), 1500 m (kolor niebieski) i 2000 m (kolor zielony) nad powierzchnią ziemi; punkty na krzywych - godzina 00:00 UTC każdego dnia

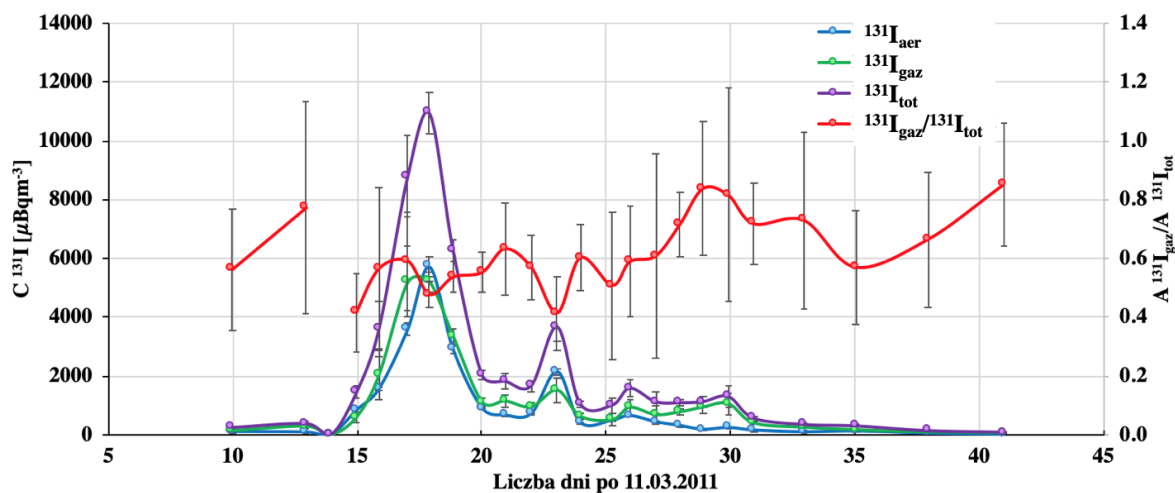
Analizując zestaw danych ^{131}I w powietrzu w Krakowie, zarówno dla frakcji gazowej jak i aerozolowej, zaskakuje fakt braku widocznego przesunięcia pomiędzy maksimami dla tych dwóch frakcji (rys. 3.33). Różnice we własnościach fizycznych gazu i aerozoli powinny spowodować, że ^{131}I we frakcji gazowej zostałyby zarejestrowane wcześniej niż we frakcji aerozolowej (^{131}I we frakcji gazowej prekursorem ^{131}I we frakcji aerozolowej), a tak nie jest. Wy tłumaczeniem tej rozbieżnej z intuicją obserwacji, może być rozdzielczość czasowa próbkowania tzn. nawet jedna doba może się okazać zbyt długim okresem by dokonać weryfikacji tego faktu. Drugim wyjaśnieniem mógłby być stan dynamicznej równowagi pomiędzy dwoma frakcjami, będący następstwem, przechodzenia ^{131}I z frakcji gazowej powietrza do aerozolowej i odwrotnie, pod wpływem różnych procesów fizyko - chemicznych, zachodzących w różnych partiach atmosfery (np.: oddziaływania z UV, reakcji z promieniowaniem kosmicznym, kondensacji, etc.). Wskaźnikiem tego procesu powinien być choćby stosunek aktywności ^{131}I we frakcji gazowej do ^{131}I w sumie dwóch frakcji. W przypadku Krakowa, iloraz ten dość mocno fluktuuje, zmieniając się od 0.4 do 0.9 ze średnią \pm SD wynoszącą 0.62 ± 0.12 (rys. 3.33), i jest to niewątpliwie asumpt do stwierdzenia, że możliwa jest migracja ^{131}I pomiędzy frakcjami



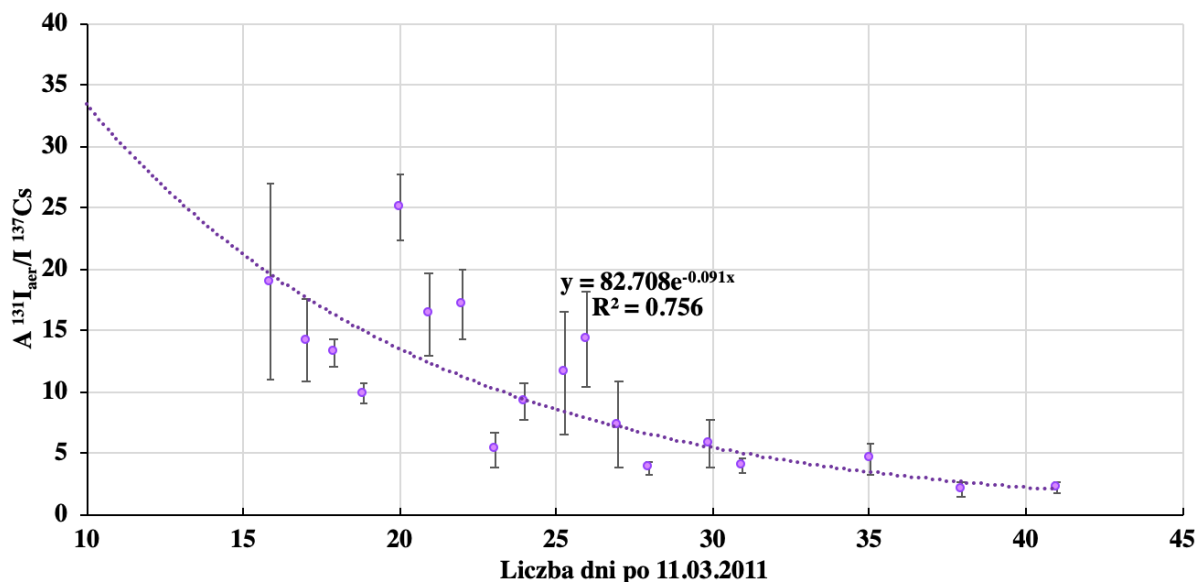
Rysunek 3.32: Przebieg wybranych trajektorii mas powietrza mających początek 29.03.2011 r. o godz. 22:00 UTC nad FDNPP oraz pionowy profil wysokości w/w trajektorii. Model: HYSPLIT [167], czas obserwacji trajektorii: 315 godzin, użyte dane meteorologiczne: GDAS.

AGL (above ground level) - wysokość nad poziomem ziemi; kolorowe krzywe oznaczają trajektorie mające początek na wysokości 1000 m (kolor czerwony), 1500 m (kolor niebieski) i 2000 m (kolor zielony) nad powierzchnią ziemi; punkty na krzywych - godzina 00:00 UTC każdego dnia

powietrza. Jednak zaobserwowana fluktuacja może być nie tylko wynikiem procesów zachodzących w atmosferze ale też cechą charakterystyczną związaną z uwolnieniami z FDNPP. Wspomniany powyżej stosunek aktywności ^{131}I wyznaczony na terenie Japonii (pobór próbek frakcji powietrza na terenie FDNPP i Tōkai) [13] w czasie od 15.03.2011 do 30.04.2011, oscylował pomiędzy 0.4 a 1.0, ze średnią wynoszącą 0.8 co dowodzi, że zarejestrowana w Krakowie oscylacja jest cechą immamentną izotopowych uwolnień z FDNPP. A to z kolei pokazuje, że pomimo dalekozasięgowego transportu ^{131}I w zmiennych warunkach atmosferycznych i na różnych wysokościach w atmosferze, pewne cechy (w tym przypadku stosunki aktywności) układu wrażliwego na bodźce zewnętrzne (tak jak wyżej: UV, promieniowanie kosmiczne, kondensacja, etc.) zostają zachowane i przeniesione na odległość rzędu 10 000 km. Dowodem nie wprost na to, że równowaga ^{131}I pomiędzy frakcjami jest zachowana (przy braku migracji ^{131}I pomiędzy nimi) lub nie można było jej zaprzeczyć z uwagi na dobowy okres próbkowania, jest zmiana stosunku aktywności ^{131}I do ^{137}Cs we frakcji aerozolowej, gdzie czas połowicznego zaniku izotopu Cs jest na tyle długi by na jego tle można było rejestrować wszelkie zmiany dotyczące izotopu krótkożyciowego.



Rysunek 3.33: Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji gazowej (gaz), aerozolowej (aer) i sumie obydwu frakcji (tot) oraz stosunek aktywności ^{131}I we frakcji gazowej do ^{131}I w sumie frakcji gazowej i aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011.

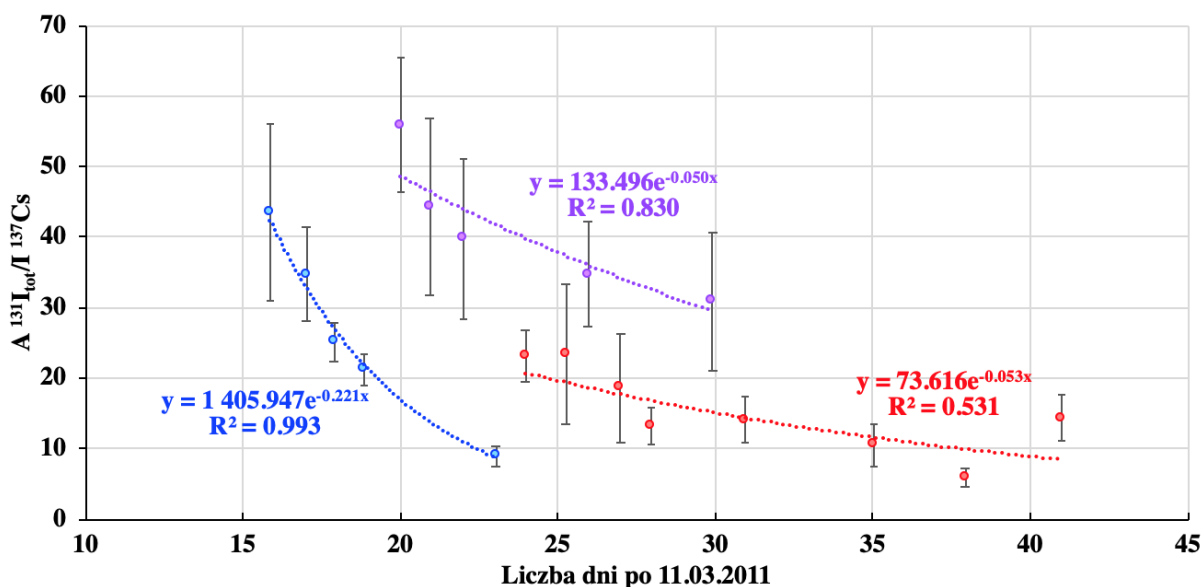


Rysunek 3.34: Zmiana stosunku aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej (aer) do ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011.

Z rys. 3.34 wynika, że oszacowane wartości układają się na wykresie zgodnie z trendem wykładniczym z dobrym dopasowaniem ($R^2=0.76$). Przyrównując wykładnik funkcji eksponencjalnej otrzymanej z dopasowania, do wykładnika funkcji opisującej rozpad jąder izotopu w czasie, otrzymujemy informację, że czas połowicznego zaniku dla stosunku ^{131}I i ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza wynosił 7.6 dnia z przedziałem zmienności od 6.6 dnia do 8.9 dnia. Oznacza to, że zmiennością stosunku tych dwóch izotopów, z których jeden jest bardziej niż drugi wrażliwy na oddziaływania w trakcie transportu w atmosferze, rządził jedynie czas połowicznego zaniku ^{131}I (8.03 dnia, tab. 1.6). To z kolei potwierdza fakt, że w zastosowanym systemie rozdzielczości czasowej próbkowania, w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie, w rozważanym okresie, nie zaobserwowano śladów wymiany ^{131}I pomiędzy frakcją

gazową i aerozolową powietrza.

Wszelkie odstępstwa punktów eksperymentalnych od krzywej wykładniczej, mogą być tłumaczone fluktuacją składowej ^{137}Cs , pochodzącej z resuspensji, której stężenie aktywności dla miejsca próbkowania na terenie IFJ PAN, zmienia się w zakresie od wartości poniżej MDC do kilkunastu $\mu\text{Bq m}^{-3}$ (badania obejmujące lata 2005 - 2015 z wyłączeniem roku 2011). Konfrontacja tych wartości z wynikami uzyskanymi w ramach badań własnych dla ^{137}Cs , potwierdza istotność resuspensji w okresach kiedy stężenia aktywności tego izotopu były rejestrowane na poziomie kilku-, kilkunastu - $\mu\text{Bq m}^{-3}$ (wówczas resuspensja miała istotny wpływ na wyniki i ich interpretację). Wykonując identyczną analizę dla innego izotopu Cs, tj. ^{134}Cs , o krótszym czasie połowicznego zaniku, który jest ewidentnym śladem uwolnień w Japonii, otrzymano wynik identyczny w granicach niepewności z poprzednim tj. czas połowicznego zaniku stosunku aktywności izotopów ^{131}I i ^{134}Cs wyniósł 7.6 dnia z przedziałem zmienności od 6.7 dnia do 8.7 dnia, co potwierdza tezę o tym, że na podstawie wykonanych badań nie stwierdzono przesłanek na temat wymiany ^{131}I pomiędzy gazową i aerozolową frakcją powietrza. Ta interpretacja mogłaby się tu zakończyć, gdyby traktować FDNPP jako jedno, dobrze zdefiniowane źródło. Tymczasem mając wiedzę na temat jego złożoności (uwolnienia w różnym czasie z trzech reaktorów, rozdz. 1.1.3, 2.2.2) i spoglądając na otrzymane wyniki z perspektywy informacji jakie mamy na temat chronologii zdarzeń w FDNPP, możemy dość łatwo wydzielić w zestawie danych stosunku aktywności ^{131}I (suma frakcji gazowej i aerozolowej) i ^{137}Cs , trzy zbiory wyników (rys.3.35). W tym przypadku zostało wybrane całkowite stężenie aktywności ^{131}I , a nie jego wartości w wybranej składowej powietrza, z uwagi na fakt braku obserwacji migracji ^{131}I pomiędzy frakcją gazową i aerozolową w przygruntowej warstwie powietrza (struktura układu wyników została zachowana, rys. 3.34 i 3.35). Wybór ^{137}Cs a nie ^{134}Cs , został podyktowany dłuższym czasem połowicznego zaniku tego izotopu i poparty brakiem różnic w uzyskanych wynikach analiz, w oparciu o te dwa izotopy.



Rysunek 3.35: Zmiana stosunku aktywności ^{131}I w sumie frakcji gazowej i aerozolowej (tot) do ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011.

Trzy wyróżnione grupy wyników (rys. 3.35), odpowiadają konkretnym zdarzeniom i są limitowane charakterystycznym czasem połowicznego zaniku. I tak, pierwsza grupa (ko-

lor niebieski), którą możemy utożsamiać z maksimum widocznym na rys. 3.33 pomiędzy 27.03.2011 a 1.04.2011, ma czas połowicznego zaniku stosunku ^{131}I i ^{137}Cs równy 3.1 dnia. Druga grupa (kolor fioletowy), odpowiada kolejnemu maksimum z okresu pomiędzy 3 - 6.04.2011 z oszacowanym czasem połowicznego zaniku 13.7 dnia, zaś trzecia grupa, która dotyczy wyników dla próbek pobranych pomiędzy 4 - 26.04.2011, ma czas połowicznego zaniku równy 13.1 dnia. Wszystkie te dane wnoszą asumpt do stwierdzenia, że dzięki tej analizie, mogliśmy zaobserwować napływ śladów izotopowych FDNPP, pochodzących z conajmniej dwóch różnych serii uwolnień. Różnice w czasie połowicznego zaniku stosunku aktywności ^{131}I i ^{137}Cs , to prawdopodobnie wynik różnych procesów oczyszczania atmosfery (opady deszczu, depozycja sucha, etc.), którym poddane były masy powietrza transportujące ślady awarii, ale też różnych trajektorii, przebiegających na różnych wysokościach pomiędzy Japonią a Europą. Trzecia i ostatnia grupa, niekoniecznie musi być sygnaturą kolejnego uwolnienia ale wynikiem wymieszania mas powietrza transportujących ślady dwóch wcześniejszych emisji z reaktorów FDNPP, stąd tak relatywnie długi okres obserwacji jej istnienia. Trzecia fala markerów FDNPP, anonsowana na początku rozdziału, która powinna dotrzeć nad Polskę w końcowym etapie rozważanego w badaniach własnych okresu próbkowania tj. pomiędzy 15 - 21.04.2011, mogła pozostać nierozróżnialna/niewyróżnialna, z uwagi na stężenia aktywności izotopów z FDNPP, które już znajdowały się w atmosferze nad Europą. Niemniej jednak, analizując pojedyncze wyniki (tab. 2.33), można być pewnym, że miała ona miejsce.

Opisane powyżej fakty, są wynikiem re - interpretacji zmienności sztucznych izotopów promieniotwórczych obserwowanych w powietrzu w Krakowie, co do których pierwszy komentarz pojawił się w pracy Mietelski et al. (2014) [138].

W przypadku izotopów oznaczanych z mniejszą częstością w filtrach powietrza tj. ^{132}I i ^{136}Cs , warto zwrócić uwagę na fakt, że były one identyfikowalne jedynie w czasie trzech omówionych powyżej okresów maksimum (tab. 2.33). Oznaczone stosunki aktywności ^{132}I i ^{131}I zmieniały się w przedziale od 0.0191 do 0.25 ze średnią \pm SD wynoszącą 0.097 ± 0.147 , podczas gdy stosunki aktywności ^{136}Cs i ^{134}Cs fluktuowały pomiędzy 0.061 i 0.21 ze średnią 0.123 ± 0.083 . Każdy z trzech okresów, charakteryzował się innym rzędem wielkości stosunków aktywności oraz brakiem korelacji pomiędzy stosunkami izotopów I i izotopów Cs. Stanowi to kolejnym dowód twierdzenia, że mogliśmy obserwować trzy fale napływu izotopowych śladów FDNPP, o różnym pochodzeniu (uwolnienia z różnych bloków reaktorów FDNPP). Przypisywanie danemu maksimum konkretnego uwolnienia, nie ma większego sensu z uwagi na to, że w rozpatrywanej skali czasu (21.03.2011 - 26.04.2011) uwolnienie nie było zdarzeniem punktowym ale ciągłym. W związku z tym, istniała mnogość sytuacji i warunków, w których mogło dojść do zmieszania śladów transportowanych przez masy powietrza.

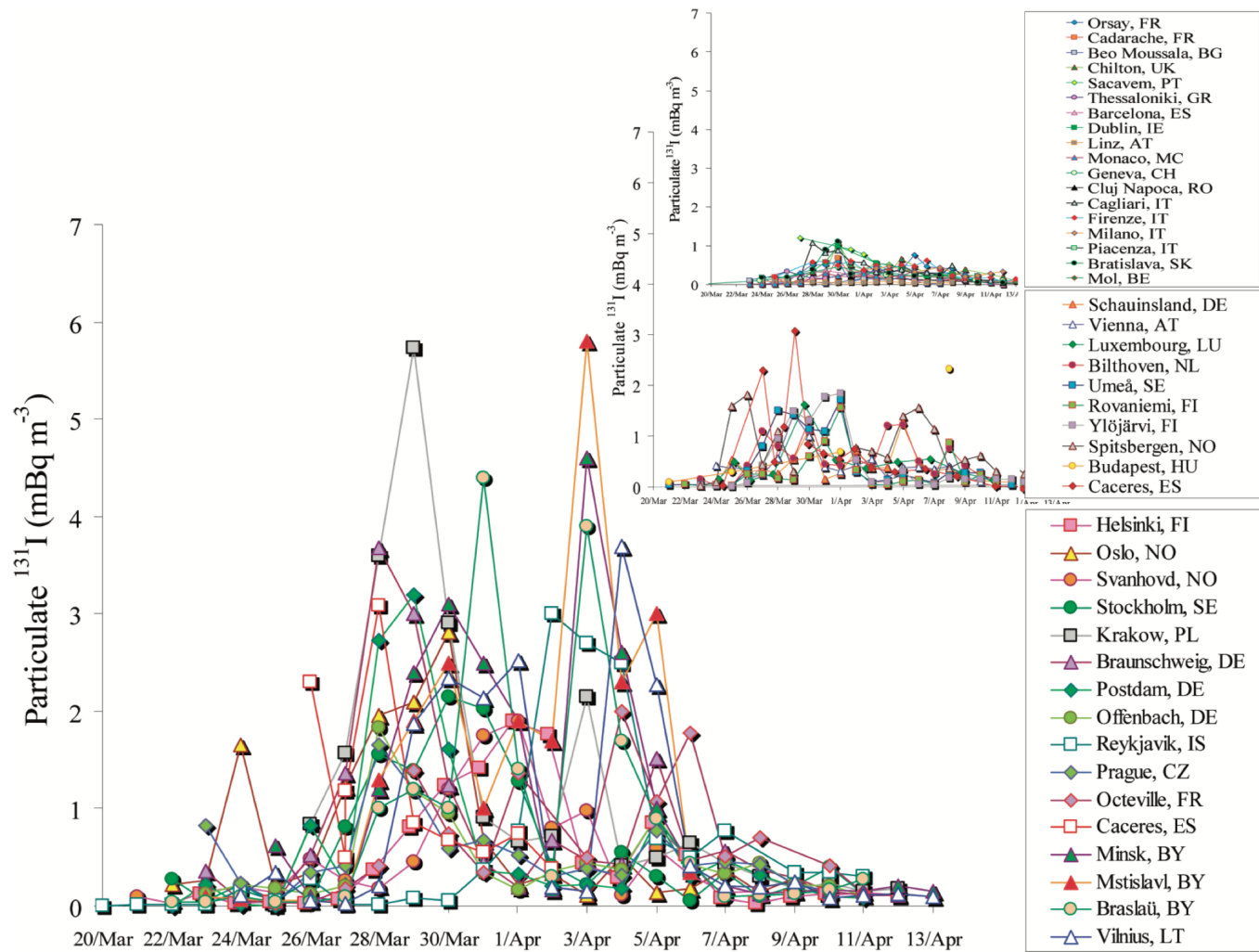
Badania całkowitego opadu atmosferycznego, dały możliwość, przyglądania się procesowi oczyszczania atmosfery ze śladów FDNPP. Maksimum depozycji izotopów sztucznych, przypadło na maj 2011 r. (dla porównania brak takiej zależności dla izotopów kosmogenicznych, tab. 2.35), podczas gdy ostatnie ślady awarii (^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs), zostały zarejestrowane miesiąc później tj. w czerwcu 2011 r. (rozdz. 2.4.4). Przedstawiona struktura wyników własnych, nie znajduje swego odbicia w stosunkach aktywności ^{131}I i ^{137}Cs (wyznaczonych jedynie dla kwietnia, maja i czerwca), zmieniających się od 370 w kwietniu do 1150 w czerwcu, czego powodem może być różne traktowanie próbki DS04B11 (kwiecień) niż próbek DS0511 i DS0611 (maj i czerwiec, rozdz. 2.4.3), ale też zróżnicowane wymywanie I i Cs z atmosfery, co mogło być skutkiem różnic w formach chemicznych występowania obu pierwiastków. Natomiast w przypadku stosunku aktywności izotopów Cs (^{134}Cs i ^{137}Cs), struktura wyników jest

odwrócona i maksimum przypada w kwietniu a minimum w czerwcu 2011 r. Warto jednak podkreślić, że wartości tego stosunku znacznie odbiegają od 1, która została wyznaczona jako wartość charakterystyczna dla FDNPP. Wyniki z zakresu od 0.243 do 0.869 również różnią się od wartości zweryfikowanych dla filtrów powietrza z Krakowa, mieszczących się w przedziale 0.6 - 1.8. Tutaj z kolei, ważnym elementem interpretacji może być składowa związana z resuspensją. Badania z lat 2005 - 2015 z Krakowa (bez uwzględnienia 2011 r.) pokazały, że depozycja ^{137}Cs w całkowitym opadzie atmosferycznym, może fluktuować od wartości poniżej limitu detekcji do 0.183 Bq m^{-2} , a jej średnia wynosi 0.033 Bq m^{-2} [140]. Konfrontacja tych danych, z wynikami badań własnych (tab. 2.35) upewnia, że jest to główna przyczyna maskowania śladów FDNPP. Uzasadnieniem tego stwierdzenia może być także inny fakt. Rozważając próbkę opadu atmosferycznego DS04A11, o najkrótszym czasie poboru, wynoszącym 8 dni (tab. 2.32) oraz filtry powietrza eksponowane w tym samym okresie (28.03.2011 - 5.04.2011), możemy oszacować wysokość z jakiej nastąpiło wymycie danego pierwiastka z atmosfery (przy założeniu izotropowego stężenia aktywności w powietrzu), dzieląc stężenie aktywności danego izotopu w powietrzu (stężenie w całym rozpatrywanym okresie) przez jego depozycję. Wykonanie takiego zabiegu dla ^{131}I przynosi wysokość wynoszącą ok. 600 m, podczas gdy dla ^{137}Cs wysokość ta wynosi już ok. 10 000 m. Nadmienić należy, że był to jednocześnie okres kiedy nie zarejestrowano obecności ^{134}Cs , ewidentnego śladu awarii w FDNPP. Zarówno ta obserwacja jak i duża rozbieżność otrzymanych wartości wysokości, jest dowodem znaczącego udziału resuspensji w przypadku ^{137}Cs i sygnałem do krytycznego analizowania danych z nim związanych w przypadku opadu atmosferycznego. Należy jeszcze dodać, że uzyskane wyniki dla depozycji w Krakowie w marcu, kwietniu i maju dla ^{137}Cs , są kilkadziesiąt milionów razy mniejsze niż depozycja na terenie FDNPP czy też od kilkuset razy do kilkudziesięciu tysięcy razy mniejsze niż depozycja w wymienionych miesiącach w Tōkiō, oddalonego od FDNPP o ok. 220 km [6].

Kończąc ten podrozdział, warto skomentować także fakt występowania śladów FDNPP w powietrzu, w kontekście narażenia na skażenia wewnętrzne ludności zamieszkującej obszar Krakowa. Jednoczesne wielowątkowe badania, prowadzone w trakcie i po awarii FDNPP, dotyczące m.in. atmosfery, jak i ludzi wchodzących w skład grupy odniesienia dla osób przebywających w Japonii, pozwoliły na stwierdzenie, że zarejestrowane stężenia aktywności izotopów w Krakowie, kilkaset tysięcy razy mniejsze niż te zweryfikowane w powietrzu nad Japonią oraz wielkość ich depozycji, kilkadziesiąt milionów razy mniejsza niż na terenie FDNPP, nie miały żadnego zauważalnego wpływu na mieszkańców Krakowa. Oznacza to, że nie tylko nie zidentyfikowano ale także nie było możliwości identyfikacji (przy posiadaniu bardzo czułego systemu pomiarowego) w organizmach pacjentów izotopów, mogących mieć jakikolwiek związek z FDNPP.

3.3.2 Izotopowe ślady awarii FDNPP w powietrzu nad Europą

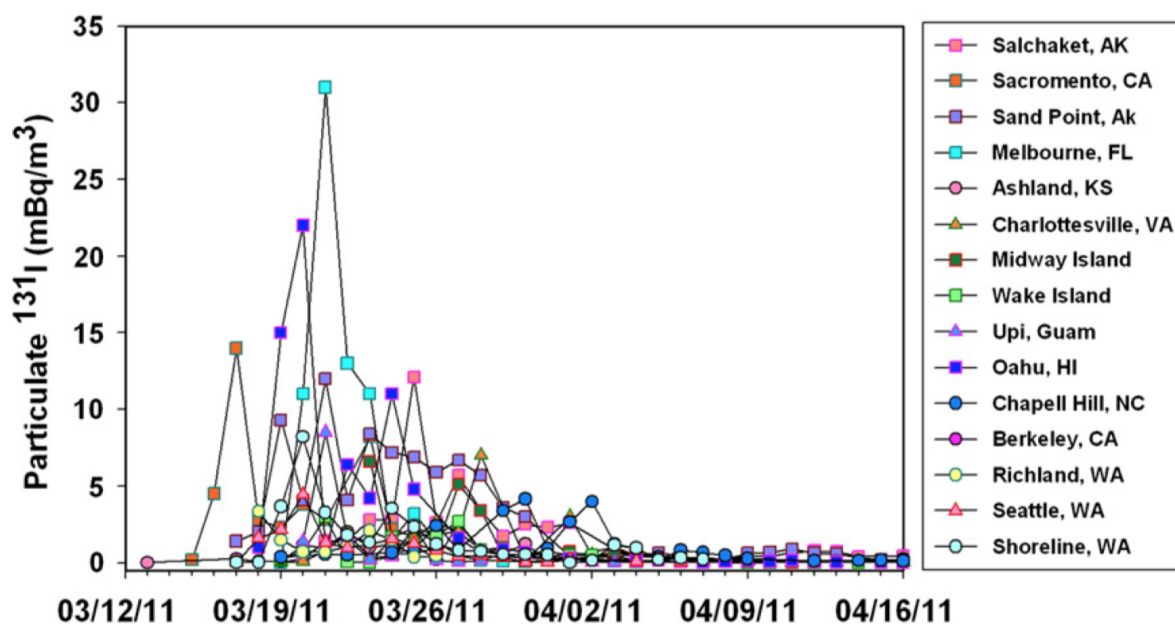
Przyglądając się migracji izotopowych śladów FDNPP nad Europą, można mieć poczucie, że fakty stwierdzone w Krakowie i zinterpretowane powyżej, doskonale wpisują się w ciąg zdarzeń rejestrowanych w skali kontynentu w 2011 r. Publikacją skupiającą największą liczbę wyników, dotyczących badań atmosfery pochodzących z laboratoriów europejskich (ok. 150 miejsc poboru próbek), na podstawie których można wyciągać najbardziej kompletne i generalne wnioski, jest praca Masson et. al. (2011). Z niej to, możemy dostać eksperymentalne potwierdzenie wyników symulacji trajektorii mas powietrza przemieszczających się z Japonii nad Europę (rys. 3.29 i 3.31) oraz uszczegółowienie trajektorii już tylko nad kontynentem.



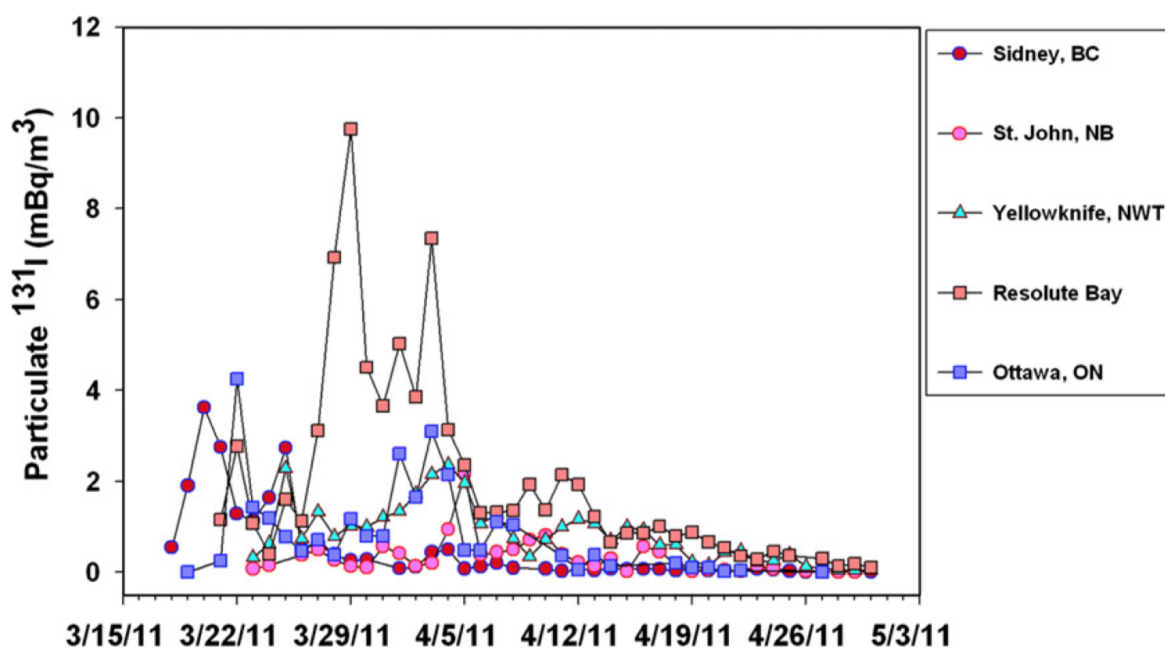
Rysunek 3.36: Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w Europie pomiędzy 20.03.2011 a 13.04.2011 [141]. Europa północna i środkowa - wykres na dole, Europa zachodnia - wykres w środku, Europa południowa - wykres na górze

Zgodnie z tym co zostało napisane na początku rozdz. 3.3, izotopowe ślady FDNPP napłynęły nad Europę z północy a następnie „korytarzem” szerokim na ok. 3 000 km przez Skandynawię zmierzały w kierunku południowo - wschodnim przez wschodnie Niemcy, Polskę, Czechy i Białoruś [141]. Posługując się analizą chronologiczną europejskich wyników ^{131}I w aerozolowej frakcji powietrza, można dokonać usankcjonowania teorii o falowym napływie śladów awarii nad Europę. W okresie od 20.03.2011 do 13.04.2011, podobnie jak dla Krakowa, zaobserwowano dwa maksima w ciągu tych danych. Niemniej jednak, warto zwrócić uwagę na fakt, że struktura danych jest inna niż ta zaprezentowana w rozdz. 3.3.1 (rys. 3.33). Z punktu widzenia Europy, oba maksima były równorzędne i o takiej samej amplitudzie (rys. 3.36). W niniejszym opracowaniu prezentowana jest re - interpretacja tego faktu, zauważonego i skomentowanego w publikacji Masson et al. (2011). W 2011 r. komentarz ów zawierał stwierdzenie, że istnienie dwóch maksimów jest wynikiem opadów deszczu w większej części Europy, które częściowo oczyściły atmosferę. O tym, że fakt ten można wytłumaczyć inaczej, przekonują zarówno skala maksimów jak i ich położenie na osi czasu oraz struktura wyników dla ^{131}I w powietrzu w Japonii. Maksima w Europie były zarejestrowane w odstępie ok. 7 dni, czyli mniej więcej w czasie połowicznego zaniku ^{131}I . Gdyby to była ta sama „chmura”, która przemieszczała się przez Europę, to wyniki dla przedziału 3 - 5.04.2011 powinny być przynajmniej o połowę mniejsze od tych, które zostały oszacowane dla pierwszego maksimum. A biorąc pod uwagę udział procesów oczyszczających atmosferę, powinny być jeszcze dodatkowo pomniejszone. Tymczasem drugie maksimum, ma amplitudę porównywalną z pierwszym maksimum i jak pokazują wyniki przedstawione na rys. 3.27, jest ono w odpowiedniej odległości czasowej od pierwszego by być kojarzonym z podobnym zdarzeniem zarejestrowanym w Japonii. Dodatkowo rys. 3.31, niesie informację, że istniała możliwość transportu izotopów w tym przedziale czasowym znad Japonii nad Europę. Pomimo komplementarności preferowanej tezy (napływ falowy śladów FDNPP) należy dodać, że z kolei hipoteza przedstawiona w publikacji Masson et al. (2011) ma też swoje meteorologiczne uzasadnienie. Autor niniejszego opracowania, przy użyciu modelu HYSPLIT [167] zweryfikował pozytywnie prawdopodobieństwo transferu mas powietrza w danym czasie pomiędzy lokalizacjami, w których stwierdzono maksima. Dla porównania z wynikami z Europy na rys. 3.37 i 3.38, przedstawiono zebrane dane z terenu Ameryki Północnej tj. USA i Kanady [169]. Na każdym z nich widoczne są dwa maksima. Pierwsze maksimum dość szerokie, rozpoczynające się od wyników zebranych na Oahu (Hawaje), przez Sacramento (Kalifornia), Dutch Harbor (Alaska) zarejestrowane było 21.03.2011 w Melbourne (Floryda) i w Boise (Idaho), czyli w całej rozciągłości Ameryki Północnej (na zachodnim i wschodnim wybrzeżu oraz na północy). Zaś drugie pomiędzy 28 - 29.03.2011, zostało zweryfikowane w zatoce Resolute Bay, na północy Kanady [169]. Nałożenie tych dwóch wykresów na siebie (z zachowaniem rozdzielczości czasowej), czyli spojrzenie na nie w kontekście całego kontynentu powoduje, że dostajemy wyraźną strukturę „dwugarbną”, dokładnie taką jaką widać było w Europie, oczywiście z przesunięciem na osi czasu w stronę daty awarii FDNPP. Widoczna różnica w amplitudach maksimów pomiędzy Ameryką Północną a Europą powstaje w wyniku długości trajektorii mas powietrza, które transportowały aerozole. Trajektorie biegnące przez północną Kanadę (rys. 3.32) były krótsze a więc szybciej docierały do Europy, stąd poprawka na rozpad ^{131}I jest mniejsza i amplituda maksimum drugiego może dorównywać amplitudzie maksimum pierwszego zarejestrowanego w Europie. Ta obserwacja, stanowi dodatkowy dowód wcześniejszego stwierdzenia, że napływ śladów FDNPP nad Europę był falowy a więc nie była to jedna „chmura”.

Największe stężenia aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej powietrza w Europie, zo-



Rysunek 3.37: Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w USA pomiędzy 12.03.2011 a 16.04.2011 [169].



Rysunek 3.38: Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w Kanadzie pomiędzy 15.03.2011 a 3.05.2011 [169].

stały wyznaczone w powietrzu w Polsce w Krakowie (tab. 2.33) oraz na Białorusi w Braślawiu i były one bliskie 6 mBq m^{-3} . Dla Europy zachodniej i południowej, stężenia te osiągały znacznie niższe wartości tj. poniżej 1.5 mBq m^{-3} [141]. Wyniki maksymalne dla Europy są ok. 5 razy mniejsze niż wartości maksymalne zmierzone w USA i Kanadzie oraz tak jak to zostało napisane w rozdz. 3.3.1, do miliona razy mniejsze niż dane uzyskane z pomiarów ^{131}I w powietrzu na terenie FDNPP. Na tej podstawie można wyciągnąć wniosek, że największe

rozcieńczenie lub też wymycie aerozoli ^{131}I i ich depozycja, miały miejsce nad Japonią lub nad Pacyfikiem. W przypadku ^{131}I we frakcji gazowej w Europie, sytuacja układała się nieco inaczej niż to było opisane dla formy aerozolowej. Zaznaczyć należy, że ten aspekt badań był mniej dokładnie opisany na świecie, z uwagi na mniejszą liczbę stacji poboru tej frakcji powietrza. Największe stężenia aktywności tego izotopu tym razem zanotowano w Skandynawii tj. w Helsinkach (Finlandia) oraz Oslo (Norwegia) i wynosiły one odpowiednio ok. 9 mBq m^{-3} [170] oraz 11 mBq m^{-3} [169]. To co ważne to fakt, że dla wskazanych lokalizacji, stężenie ^{131}I w formie gazowej było kilkukrotnie większe niż we frakcji aerozolowej pobieranej w tym samym czasie. Trendy przebiegu zmienności ^{131}I zarówno w formie gazowej jak i aerozolowej (istnienie dwóch maksimów) były zachowane [170]. Porównując ten wynik z obserwacją w Krakowie, gdzie amplitudy stężenia aktywności ^{131}I w obu frakcjach były zbliżone (rys. 3.33), oraz biorąc pod uwagę wzajemne położenie omawianych lokalizacji, możemy wnioskować o rozprzestrzenianiu się dwóch frakcji powietrza w sposób niezależny. Do tego samego wniosku można dojść, analizując wyniki w jeszcze większej skali geograficznej. Konfrontując dane europejskie z danymi uzyskanymi dla Ameryki Północnej [169], okazuje się, że różnią się one w okresach maksimów o rząd wielkości czyli dwukrotnie więcej niż to zostało oszacowane dla frakcji aerozolowej.

Interesujących informacji, właśnie na temat wzajemnych relacji dwóch frakcji, dostarczyć może choćby stosunek aktywności ^{131}I we frakcji gazowej do całkowitego ^{131}I . Średnia wartość tego stosunku dla wyników z 7 laboratoriów (w tym IFJ PAN) wynosiła 0.772 ± 0.136 i oscylował on od ok. 0.4 do ok. 1.0 [141], a więc zachowywał się on tak, jak to było udokumentowane w pomiarach wykonanych w Japonii [13]. Co więcej w/w stosunek aktywności, o takim samym zakresie fluktuacji, ze średnią wynoszącą 0.766 ± 0.120 został zweryfikowany w powietrzu w USA pomiędzy 17 - 25.03.2011 [171]. Pozwala to, tak jak w przypadku Krakowa, skomentować ten fakt stwierdzeniem, że na poziomie przygruntowej warstwy powietrza, w różnych rejonach północnej kuli ziemskiej, nie zaobserwowano żadnych przesłanek, przemawiających za wymianą ^{131}I pomiędzy frakcją gazową a aerozolową, co nie oznacza, że takie zjawisko nie miało miejsca. Jako uzupełnienie informacji i ciekawostkę należy dodać, że wartości w/w stosunku wyznaczone w przypadku FDNPP były bliskie tym oszacowanym dla awarii w Czarnobylu (dla awarii o innej chronologii zdarzeń, mającej miejsce przy innych warunków meteorologicznych) i których maksimum mieściło się w przedziale 0.60 - 0.75 [169], [172], [173], co świadczyć może o tym, że decydujące znaczenie dla podziału I pomiędzy frakcją gazową i aerozolową mają własności fizyczne i chemiczne tego pierwiastka.

Kończąc część poświęconą wyłącznie ^{131}I , należy wspomnieć o jego pomiarach przeprowadzonych w troposferze, w północnych Niemczech oraz Szwajcarii. Otrzymane wyniki wskazywały na izotropowy rozkład stężenia aktywności ^{131}I , rzędu kilku mBq m^{-3} , w tej części atmosfery. W publikacji Masson et al. (2011) [141], opierając się na tym fakcie oraz zakładając stałość stężenia aktywności ^{131}I do wysokości 5.5 km w ciągu 10 dni oraz szybkość przemieszczania się mas powietrza równą 50 km h^{-1} na przestrzeni 3000 km, oszacowano, że nad Europę dotarło ok. $1 \text{ PBq } ^{131}\text{I}$, co daje ok. 1 % wielkości uwolnionej do atmosfery z FDNPP (tab. 1.3).

To co zastanawia przy analizie wyników otrzymanych dla izotopów w warstwie przygruntowej powietrza w Europie, to opóźnienie z jakim był rejestrowany Cs względem I, we frakcji aerozolowej. Dla Krakowa, opóźnienie to wynosiło ok. 3 dni, dla Finlandii (średnio) i Mediolanu (Włochy) ok. 2 dni [170], [174]. Odpowiedzialne za to zjawisko, mogą być różne procesy tworzenia/formowaniu aerozoli I i Cs [175]. Prowadzone badania np. w Łodzi poka-

zały, że największe stężenia aktywności ^{131}I w trakcie awarii FDNPP, były powiązane z aerodynamiczną średnicą aerozoli z przedziału $0.1 - 0.36 \mu\text{m}$ [176], zaś w Tsukuba (Japonia) ze średnicą rzędu $0.7 \mu\text{m}$ [175], podczas gdy dla izotopów Cs wartości te były większe i wyznaczone np. w pracy Kaneyasu et al. (2012) mieściły się w przedziale $0.53 - 0.54 \mu\text{m}$ lub były równe $0.63 \mu\text{m}$ odpowiednio w czasie pierwszego i drugiego maksimum [177], zaś w publikacji Doi et al. (2013) mieściły się w przedziale $1.5 - 1.8 \mu\text{m}$ dla pierwszego maksimum oraz były równe $1 \mu\text{m}$ dla drugiego maksimum [175]. Analizując te wyniki w sposób usystematyzowany, możemy znaleźć odpowiedź dlaczego w Polsce wyznaczone rozmiary aerozoli były mniejsze. Niewątpliwie było to związane z ich dalekozasięgowym transportem. Aerozole większe, były szybciej eliminowane z atmosfery. Dokładnie takie samo podłoże ma „przesunięcie” wyników Cs względem I. Aerozole Cs, z uwagi na swoje większe rozmiary, podlegały nieco innym procesom w trakcie transportu niż aerozole I. Być może, były transportowane wzdłuż różnych trajektorii i w różnym czasie. Proces w/w „przesunięcia”, możemy kontrolować poprzez stosunek aktywności ^{131}I i np.: ^{137}Cs we frakcji aerozolowej powietrza. Stosunek ten w Europie, zmieniał się w przedziale od 0.046 do 0.25 i rósł systematycznie z czasem [141]. Analizując te wyniki z punktu widzenia zależności czasowych (pomijając różnicowanie w efektywności wymywania różnych aerozoli), widać w zaobserwowanym trendzie sygnaturę czasu połowicznego zaniku ^{131}I . Należy dodać, że w/w stosunek był inny od tego oszacowanego dla uwolnień atmosferycznych z FDNPP, który wynosił 0.09 (tab. 1.3). Wyższe wyniki są uzasadnione podziałem ^{131}I pomiędzy frakcję gazową i aerozolową oraz czasem połowicznego zaniku ^{131}I , zaś niższe wyniki mogą być dowodem na zróżnicowaną eliminację aerozoli I i Cs, mającą podłoże m.in. w ich wielkości, formie chemicznej, własnościach fizycznych. Oznacza to, że dalekozasięgowy transport aerozoli atmosferycznych, stanowi swego rodzaju filtr frakcjonacji pierwiastkowej.

Średnie stężenie aktywności ^{134}Cs i ^{137}Cs w powietrzu w Europie, wynosiło odpowiednio 0.072 mBq m^{-3} oraz $0.076 \text{ Bq mBq m}^{-3}$ i poziomy te były od 10 000 do 100 000 razy mniejsze niż stężenia aktywności izotopów Cs w powietrzu w Europie po awarii w Czarnobylu. Wyznaczony stosunek aktywności ^{134}Cs i ^{137}Cs pochodzących z FDNPP, na podstawie wyników europejskich, był bliski 1 i wynosił 0.95, podczas gdy dla Czarnobyla zmieniał się w przedziale 0.5 - 0.6 [141]. W profilu wyników stężeń aktywności izotopów Cs, tak jak w przypadku ^{131}I , zaobserwowano dwa maksima. Pierwsze z nich miało miejsce w okresie 28 - 30.03.2011, z amplitudą równą 0.75 mBq m^{-3} w Polsce w Łodzi, zaś drugie na Litwie, w Wilnie w okresie 3 - 4.04.2011 i wynosiło ono 1 mBq m^{-3} [141]. Dla porównania, maksymalne stężenia aktywności izotopów Cs w powietrzu nad USA wynosiły ok. 10 mBq m^{-3} [169]. Oznacza to, że między Europą a USA rozcieńczenie i/lub wymycie aerozoli Cs z atmosfery było dziesięciokrotne, zaś pomiędzy Japonią (FDNPP) a USA ten współczynnik wynosił blisko 10 000. Czyli podobnie jak w przypadku I, największa depozycja Cs miała miejsce na terenie Japonii i/lub nad Pacyfikiem.

W przypadku depozycji radionuklidów na powierzchni ziemi, o wiele trudniej jest przeprowadzić wiarygodną analizę opublikowanych wyników, kończąc ją rzetelnym résumé. Składa się na to kilka powodów m.in. inny czas próbkowania w różnych lokalizacjach na kuli ziemskiej, inna procedura i czas przygotowania próbek do pomiarów, rozpad radionuklidów w trakcie pobierania i przygotowywania próbki, inne jednostki depozycji (Bq m^{-2} lub Bq l^{-1}), etc. Z uwagi na powyższe fakty, w tekście poniżej będzie mowa jedynie o depozycji oszacowanej na podstawie próbek zebranych koźcem marca i w kwietniu 2011 r., będących pokłosem opadów deszczu i/lub śniegu przechodzących w tym czasie przez większą część Europy. Naj-

bardziej widocznym śladem awarii FDNPP, w całkowitym opadzie atmosferycznym, tak jak w przypadku filtrów powietrza, był ^{131}I . Jego największa depozycja w Europie, została wyznaczona w Rovaniemi (północna Finlandia) i wynosiła $8.5 \pm 2.9 \text{ Bq m}^{-2}$ [170]. Była ona wyższa niż wartości oszacowane w Hiszpanii mieszczące się w przedziale $2.0 \text{ Bq m}^{-2} - 5.5 \text{ Bq m}^{-2}$ [178], [179], Mediolanie (Włochy) gdzie depozycja w/w okresie zmieniała się od 2.05 Bq m^{-2} do 3.51 Bq m^{-2} [180], w Krakowie od 3.37 Bq m^{-2} do 5.4 Bq m^{-2} (tab. 2.35), w Niemczech północnych gdzie została ona oszacowana na ok. 2 Bq m^{-2} [181], zaś w Bratysławie fluktuowała pomiędzy 0.037 Bq m^{-2} a 1.2 Bq m^{-2} [182] oraz w Lizbonie (Portugalia) wynosiła $0.92 \pm 0.11 \text{ Bq m}^{-2}$ [183]. Tak jak to było wspomniane wcześniej, trudno na podstawie tych wyników wyciągać szczegółowe wnioski. Można jedynie stwierdzić, że depozycja na północy Skandynawii (jedynie w Rovaniemi, brak potwierdzających wyników dla innych lokalizacji w Finlandii) była większa niż w innych krajach europejskich, co jest kolejnym dowodem w sprawie trajektorii transportu mas powietrza znad Japonii. W tym samym czasie, w zebranych próbkach pojawiły się ślady izotopów Cs. O ile istnienie ^{137}Cs , mogło być zaburzone przez składową resuspensji (rozdz. 3.3.1), to ^{134}Cs miał ewidentne konotacje z awarią FDNPP. W przypadku właśnie tego izotopu, brakowało zależności geograficznej pokazanej dla ^{131}I . Wszystkie wyniki były zbliżone do siebie i jednocześnie mniejsze ok. jednego rzędu wielkości, od wyników oszacowanych dla ^{131}I . W Finlandii, mieściły się one w zakresie $0.32 \text{ Bq m}^{-2} - 0.57 \text{ Bq m}^{-2}$ [170], w Mediolanie (Włochy) depozycja wynosiła $0.100 \pm 0.005 \text{ Bq m}^{-2}$ [180], w Lizbonie (Portugalia) $0.591 \pm 0.063 \text{ Bq m}^{-2}$ [183], w Krakowie fluktuowała w przedziale od 0.146 Bq m^{-2} do 0.175 Bq m^{-2} (tab. 2.35), zaś w Bratysławie (Słowacja) pomiędzy 0.004 Bq m^{-2} a 0.1 Bq m^{-2} [182]. Jedyne co można powiedzieć na temat tych wyników, przy założeniu, że w Japonii stężenia ^{134}Cs i ^{137}Cs były porównywalne, to fakt, że depozycja na terenie Europy w okresie maksimum, była kilkadziesiąt tysięcy razy mniejsza niż ta zarejestrowana w maju w Tōkiō, czy innych miastach położonych na wschodnim wybrzeżu Japonii (za wyjątkiem terenu FDNPP) [6]. Dla pełnego obrazu sytuacji należy dodać, że zarówno wartości stosunku aktywności ^{131}I do ^{137}Cs jak i ^{134}Cs do ^{137}Cs , w cytowanych publikacjach, dość mocno się zmieniały, bez wyraźnego trendu. Ostatnie ślady awarii FDNPP w całkowitym opadzie atmosferycznym, były widoczne w Europie (podobnie jak w Krakowie), w czerwcu 2011 r. (tab. 2.35, [170]).

Na koniec warto poruszyć jeszcze kwestię prawdopodobieństwa transportu pierwiastków o mniejszej lotności niż I czy Cs, znad Japonii nad Europę. Prowadzone badania w Europie w tym m.in. w Krakowie, nie potwierdziły obecności aktywnoców (Pu, Am, Cm, rozdz. 2.4.1) uwolnionych z FDNPP w przygruntowej warstwie powietrza (tab. 2.34). Podobna konkluzja powstała na wskutek badań wykonanych w USA [169]. Jednak istnieje jedna pozycja literaturowa, która prezentuje dane dotyczące izotopów Pu, które wskazują na wyraźny ślad wypalonego paliwa jądrowego, o sygnaturze jak najbardziej odpowiadającej FDNPP. Lujanien et al. (2012) na podstawie próbek aerozoli pobranych w Wilnie, na Litwie pomiędzy 23.03.2011 a 15.04.2011 szacowała, że stężenie aktywności $^{(239+240)}\text{Pu}$ wynosiło $44.5 \pm 2.5 \text{ nBq m}^{-3}$ zaś ^{238}Pu było 1.2 razy większe [168], co oznacza, że frakcja $^{(239+240)}\text{Pu}$ pochodząca z FDNPP wynosiła ok. 59 %. Trzeba zaznaczyć, że wyznaczony procentowy udział frakcji FDNPP, jest większy niż np. jakikolwiek udział oszacowany w próbkach pochodzących z terenu prefektury Fukushima w badaniach własnych (rozdz. 2.2.1). Dodatkowo stosunek aktywności ^{137}Cs do $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach z Litwy był o dwa rzędy wielkości mniejszy niż ten, wyznaczony również w badaniach własnych (rozdz. 3.1.1, „Pluton”). Nie dyskwalifikuje to jednak uzyskanego wyniku, który wskazuje ewidentnie na wypalone paliwo jądrowe, gdyż na podstawie wcześniejszych wniosków niniejszego opracowania wiadomo o frakcjonacji pierwiastkowej w

trakcie dalekozasięgowego transportu. Żeby do tego doszło i zachowane były odpowiednie proporcje, aerozole Pu musiały być mniejsze od aerozoli Cs. Jediną możliwą drogą do weryfikacji źródła pochodzenia Pu w rozważanych próbkach aerozoli, na podstawie posiadanych preparatów promieniotwórczych, byłyby badania przy użyciu spektrometrii mas i określenie stosunku mas ^{240}Pu i ^{239}Pu .

Rozdział 4

Podsumowanie

Awaria FDNPP, której „katalizatorem” było trzęsienie ziemi (Tōhoku) o M 9 w skali Richtera, u wschodnich wybrzeży Japonii (3.11.2011) i w jego następstwie tsunami o amplitudzie dochodzącej do 15 m („Wprowadzenie”, rozdz. 1.1.3), jest największą awarią jądrową XXI w. (do momentu powstania niniejszego opracowania) i drugą w historii ludzkości, po awarii w Czarnobylu (26.04.1986), sklasyfikowaną jako wielka awaria w skali INES (rozdz. 1.1.5).

Wspólnym mianownikiem wszystkich analiz prowadzonych w ramach niniejszej pracy, była identyfikacja antropogenicznych izotopów promieniotwórczych (I, ^{132}Te , Cs, Pu, ^{241}Am , ^{242}Cm , U) pochodzących z FDNPP, w różnych elementach środowiska oraz interpretacja ich zależności, w kontekście położenia geograficznego, czasu, warunków meteorologicznych, własności fizycznych i chemicznych, etc.

Na podstawie przeprowadzonych badań określono maksymalne, zweryfikowane stężenia aktywności rozważanych radionuklidów w badaniach własnych oraz opracowaniach literaturowych, w wybranych materiałach badawczych (gleba, ściółka leśna, materiał naniesiony). Dodatkowo, wyznaczono zasięgi występowania śladów izotopowych FDNPP w różnych kierunkach geograficznych w środowisku lądowym prefektury Fukushima oraz powiązano je z procesami oczyszczania atmosfery, takimi jak: depozycja sucha i mokra. Na podstawie stosunków aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ oraz modelu 2SM, dokonano weryfikacji jakościowej oraz ilościowej udziału śladów izotopowych FDNPP, w rozważanym materiale badawczym oraz przeprowadzono dowód na heterogeniczność markerów pochodzących z FDNPP. Opracowano także, przestrzenny rozkład stosunku aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ (bazując na wynikach własnych i dostępnych danych literaturowych) oraz na jego podstawie przygotowano scenariusz uwolnień i towarzyszących im depozycji Pu w środowisku prefektury Fukushima. Określono zależności izotopów Pu i ^{137}Cs oraz opracowano mapę rozmieszczenia różnych źródeł izotopowych, istniejących w środowisku Japonii, w przestrzeni zdefiniowanej stosunkami aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ oraz ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$. Rozważano także, zmianę stosunku aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w czasie, i wykazano podobieństwa pomiędzy wartościami tego stosunku charakteryzującymi FDNPP a wartościami odpowiadającymi bombie zrzuconej na Nagasaki czy GF w określonych przedziałach czasu.

Jedne z najmniej spodziewanych wyników analiz, dotyczyły ^{244}Cm . Na ich podstawie, starano się opracować ewolucję czasową zależności ^{244}Cm z izotopami Pu, ^{241}Am oraz ^{137}Cs , a także omówić przyczyny ich zmienności, w oparciu o stan wiedzy na temat występowania źródeł izotopowych w środowisku Japonii przed awarią w FDNPP oraz charakteryzujących ich stosunków aktywności.

Model nSM w wersji 4SM zastosowany do największej dostępnej w literaturze bazy

wyników aktywności dla materiału naniesionego (materiału gromadzącego najwięcej śladów izotopowych z FDNPP zarówno pod względem ilościowym jak i jakościowym), pozwolił na wykazanie braku współistnienia śladów 3 bloków FDNPP i GF w analizowanym zbiorze danych. Użycie tego samego modelu, w wersji 3SM, dodatkowo przyniosło informację, że nie ma także możliwości koegzystencji śladów 3 bloków FDNPP jednocześnie. Oznacza to, że warunki meteorologiczne panujące podczas uwolnień izotopów promieniotwórczych z reaktorów FDNPP, spowodowały rozdzielenie tych śladów. To, w jaki sposób ślady te były rozdystrybuowane w przestrzeni ilustrowały wyniki dalszych analiz, wykorzystujących współistnienie maksymalnie śladów dwóch bloków FDNPP w obecności jak i przy braku GF. Zestawienie procentowych udziałów konkurencyjnych trzy - i dwu - elementowych kombinacji źródeł izotopowych, z ich przynależnością geograficzną i sprzężenie ich z warunkami meteorologicznymi, uzasadniały egzystencję takich a nie innych źródeł w danej lokalizacji. Ponadto, w oparciu o 2SM, przeprowadzono pierwszą próbę wyjaśnienia pochodzenia aktywności na terenie prefektury Fukushima, przy uwzględnieniu niejednorodności paliwa jądrowego w reaktorach FDNPP, na poziomie $\pm 5\%$.

Badania przeprowadzone w IFJ PAN przy użyciu SCC, pozwoliły zidentyfikować skażenia wewnętrzne ^{131}I , ^{134}Cs i ^{137}Cs , u osób przebywających w Japonii w 2011 r. Skażenia te powstały w wyniku wniknięcia drogą pokarmową i/lub oddechową uwolnionych do atmosfery radionuklidów z FDNPP. Otrzymane wyniki, nie odbiegały od danych pochodzących z ośrodków naukowych w Japonii i/lub w Europie.

Ostatnim elementem prowadzonych badań, była identyfikacja śladów awarii FDNPP w atmosferze nad Krakowem a także nad Europą. Połączenie tych danych, z komplementarnym dalekozasięgowym modelem trajektorii mas powietrza i/lub modelem przestrzennego rozkładu częstości występowania trajektorii, przyniosło (wg. autora) wyjaśnienie zagadnienia istnienia maksimów w przebiegu zmienności stężenia aktywności ^{131}I , we frakcji gazowej i aerozolowej powietrza, oraz izotopów Cs w Europie. Jednocześnie starano się uzasadnić istnienie kilku - lub kilkunastu - dniowych opóźnień rejestracji tych maksimów w Europie względem USA czy Japonii. Dodanie informacji o różnicowaniu wielkości tworzonych aerozoli, podczas emisji z bloków FDNPP, pozwoliły dodatkowo uzasadnić zjawisko frakcjonacji pierwiastkowej, zachodzącej w trakcie transportu aerozoli na duże odległości, zaobserwowane na podstawie analizy stosunków aktywności ^{131}I i ^{137}Cs . Opierając się na danych dotyczących depozycji izotopów na powierzchni ziemi, określono współczynniki oczyszczenia atmosfery pomiędzy Europą a USA i Europą a Japonią, z jednoczesnym wnioskiem, że ostatnie ślady FDNPP w atmosferze nad Europą były identyfikowalne w czerwcu 2011 r.

Autor niniejszego opracowania żywi głęboką nadzieję, że przedstawione dane i sposoby ich interpretacji, nie tylko odpowiadają na pytanie jaki był stan izotopów w środowisku, w danym momencie ale także jak ten stan zmieniał się na przestrzeni dni, miesięcy oraz lat. Oczywiście, kierując się powyższymi wynikami można by pokusić się o przewidywanie/opisanie w/w stanu w przyszłości. Taka wiedza mogłaby mieć duże znaczenie np.: w kontekście ekspansywnego rozwoju energetyki i przemysłu jądrowego w Azji czy też próby wyznaczenia izotopowego poziomu „0” dla środowiska Japonii po awarii FDNPP oraz znajdowania miejsc określanych jako „hot spoty”.

Podziękowania

Monografia jest obrazem tego, w jaki sposób udało mi się „dotknąć”, „doświadczyć”, opisać i zinterpretować skutki/ślady awarii elektrowni jądrowej Fukushima Daiichi (FDNPP). Nie byłoby to możliwe gdyby nie pomoc i współpraca ludzi, którzy pojawili się na mojej drodze, w ciągu kilku lat pracy nad tym zagadnieniem.

Dziękuję mojemu Szefowi prof. dr hab. J. Wojciechowi Mietelskiemu za „czuwanie”, cierpliwość, dyskusje i czas, który mi poświęcił.

Dziękuję pracownikom Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN, za życzliwość i szeroko pojętą pomoc, pracownikom QST w Japonii za to, że dzięki nim miałam szansę spojrzeć na awarię FDNPP z zupełnie innej perspektywy.

Dziękuję dr inż. Pawłowi Janowskiemu za „zastrzyk” kreatywności i przeświadczenie, że w sprawach eksperymentów nie ma rzeczy niemożliwych, mgr inż. Magdalenie Grochowskiej za to, że chciała się zmierzyć z tematem POLI a obojgu oraz dr Krzysztofowi Kleszczowi za to, że pojawili się w odpowiednim czasie w IFJ PAN.

Dziękuję dr Barbarze Petelenz za indywidualne komplety z chemii, prof. dr hab. Pawłowi Olko za wiarę, że ta praca powstanie, dr hab. Krzysztofowi Kozakowi za czas spędzony z moją monografią.

To opracowanie jest w pewien sposób pokłosiem pracy moich nauczycieli, Pani Anny Bizior ze Szkoły Podstawowej w Horyńcu - Zdroju i Pana Mariana Grenika z Liceum Ogólnokształcącego w Lubaczowie. Dziękuję.

„Last but not least” - dziękuję mojej rodzinie za to, że niezmiennie, bezwarunkowo i „pomimo” wciąż jest przy mnie.

Lista wybranych skrótów i akronimów

Poniżej zebrano wybrane skróty i akronimy występujące w tekście opracowania wraz z ich pełnym rozwinięciem i/lub (jeśli to możliwe) tłumaczeniem na język polski i/lub (jeśli to konieczne) bardzo krótką charakterystyką.

2SM, 3SM, 4SM, nSM	Two-, Three -, Four-, n- Sources Model/ model dwóch-, trzech-, czterech-, n- źródeł
AC	Alternating Current/ prąd zmienny
ASS	Aerosol Sampling Station stacja poboru aerozoli
B1, B2, B3	bloki nr. 1, 2, 3 elektrowni jądrowej Fukushima Daiichi
BGO	$\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ typ detektora scyntylicyjnego
BMI	Body Mass Index
BWR	Boiling Water Reactor/ reaktor wodny wrzący
CLOR	Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej
DOE	The U.S. Department of Energy/ Departament Energii USA
EURADOS	European Radiation Dosimetry Group
FDNPP	Fukushima Nuclear Power Plant/ Elektrownia Jądrowa Fukushima Daiichi
FPP 15 - 1.5	15 – 1.5 - Postchlorinated Polyvinylchloride PCV Fiber/ materiał, z którego wykonano filtry powietrza wykorzystane w pracy
FWHM	Full Width at Half Maximum/ szerokość w połowie wysokości piku (zdolność rozdzielcza)
GF	Global Fallout/ opad radionuklidów po testach z użyciem broni jądrowej (w opracowaniu + izotopowe ślady SNAP 9A)
HPGe	High Purity Germanium/ typ detektora germanowego
HYSPLIT	Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model
IAEA	International Atomic Energy Agency/ Międzynarodowa Agencja Energii Atomowej
IFJ PAN	Instytut Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk
INES	International Nuclear and Radiological Event Scale/ Międzynarodowa Skala Zdarzeń Jądrowych i Radiologicznych
JAEA	Japan Atomic Energy Agency
JCAC	Japan Chemical Analysis Center
JSPS	Japan Society for the Promotion of Science
JST	Japan Standard Time/ czas japoński
LD	Detection Limit/ limit detekcji
LET	Linear Energy Transfer/ liniowy przekaz energii
LOOP	Loss of Offsite Power/ utrata zasilania zewnętrznego

MASS	Modified Aerosol Sampling Station/ zmodyfikowana stacja poboru aerozoli
MDA	Minimum Detectable Activity/ minimalna mierzalna aktywność
MDC	Minimum Detectable Concentration/ minimalne mierzalne stężenie aktywności
MEXT	Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology/ Ministerstwo Edukacji, Kultury, Sportu, Nauki i Technologii (Japonia)
MOX	Mixed Oxide fuel/ paliwo jądrowe w postaci mieszaniny tlenków plutonu i uranu
NaI(Tl)	jodek sodu domieszkowany talem typ detektora scyntylicyjnego
NCBJ	Narodowe Centrum Badań Jądrowych
NCBR	Narodowe Centrum Badań i Rozwoju
NIRS	National Institute of Radiological Sciences (Japonia)
NISA	Nuclear and Industrial Safety Agency (Japonia)
NMIJ	National Calibration Institute of Japan
PAA	Państwowa Agencja Atomistyki
PCV	polichlorek winylu
PIPS	Pasivated Implanted Planar Silicon/ typ detektora krzemowego
PNEs	Peaceful Nuclear Explosions/ użycie ładunków jądrowych w zastosowaniach cywilnych
PPG	Pacific Proving Grounds/ testy broni jądrowej przeprowadzone na Pacyfiku przez USA w latach 1946 - 1962
PWR	Pressurized Water Reactor/ reaktor wodny ciśnieniowy
QST	National Institutes for Quantum and Radiological Sciences and Technology (Japonia)
REE	Rare Earths Elements/ pierwiastki ziem rzadkich
REGe	Reverse Electrode Germanium/ typ detektora germanowego
RMBK	Реактор Большой Мощности Канальный)/ reaktor kanałowy dużej mocy
Ro5	Ring of Five/ nieformalna sieć laboratoriów zajmujących się monitoringiem skażeń promieniotwórczych w atmosferze
RSD	Radiology Support Devices Inc. USA
SCC	Spektrometr CałegoCiała w IFJ PAN
SCRAM	procedura szybkiego wprowadzania prętów kontrolnych do rdzenia reaktora jądrowego
SNAP	System for Nuclear Auxiliary Power Generator
TEPCO	Tokyo Electric Power Company, Inc.
Ultra LEGe	LEGe - Ultra Low Energy Germanium/ typ detektora germanowego
UOX	Uranium Oxide fuel/ paliwo jądrowe w postaci tlenków uranu
UTC	Universal Time Coordinated/ uniwersalny czas koordynowany

Bibliografia

- [1] *Report of the Japanese Government to the IAEA Ministerial Conference on Nuclear Safety -The Accident at TEPCO's Fukushima Nuclear Power Stations*, <http://www.dl.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/6011053>, dostęp: luty 2018 r., 2011.
- [2] Japan Meteorological Agency, "Information on the 2011 off the Pacific Coast of Tohoku Earthquake", 2012. DOI: 10.1007/978-4-431-54418-0.
- [3] D. Demetriou, *Japan earthquake, tsunami and Fukushima nuclear disaster: 2011 review*, <http://www.telegraph.co.uk/news/worldnews/asia/japan/8953574/Japan-earthquake-tsunami-and-Fukushima-nuclear-disaster-2011-review.html>, dostęp: październik 2018 r., 2011.
- [4] *Diagram of a BWR (boiling water reactor) with Mark I containment*, <https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Reaktor.svg>, MovGPO [CC BY-SA 3.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by-sa/3.0/>)], dostęp: październik 2018 r.
- [5] IAEA, *Description and context of the accident*, ser. The Fukushima Daiichi accident. Wiena: IAEA, 2015, t. 1.
- [6] P. P. Povinec, K. Hirose i M. Aoyama, *Fukushima Accident. Radioactivity Impact on the Environment*. Elsevier, 2013, ISBN: 9780124081321. DOI: 10.1016/B978-0-12-408132-1.00004-8.
- [7] A. Bielański, *Podstawy chemii nieorganicznej*. Warszawa: Wydawnictwo Naukowe PWN Sp. z.o.o., 1987, ISBN: 83-01-12357-5.
- [8] The National Diet of Japan Fukushima Nuclear Accident Independent Investigation Commission, *The official report of The Fukushima Nuclear Accident Independent Investigation Commission. Executive summary*. https://www.nirs.org/wp-content/uploads/fukushima/naiic_report.pdf, 2012.
- [9] J. M. Schwantes, C. R. Orton i R. A. Clark, "Analysis of a nuclear accident: Fission and activation product releases from the fukushima daiichi nuclear facility as remote indicators of source identification, extent of release, and state of damaged spent nuclear fuel", *Environmental Science and Technology*, t. 46, nr. 16, s. 8621–8627, 2012, ISSN: 0013936X. DOI: 10.1021/es300556m.
- [10] K. Nishihara, H. Iwamoto i K. Suyama, "Estimation of Fuel Compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant", *IAEA-Data/Code*, t. 2012-018, 2012.
- [11] J. Zheng, K. Tagami i S. Uchida, "Release of plutonium isotopes into the environment from the fukushima daiichi nuclear power plant accident: What is known and what needs to be known", *Environmental Science and Technology*, t. 47, nr. 17, s. 9584–9595, 2013, ISSN: 0013936X. DOI: 10.1021/es402212v.

- [12] Ministry of Economy, Trade and Industry, “放射性物質放出量データの一部誤りについて”, 2011.
- [13] IAEA, *Radiological Consequences*, ser. The Fukushima Daiichi accident. Viena: IAEA, 2015, t. 4.
- [14] W. Brzyska, *Lantanowce i aktynowce*. Warszawa: Wydawnictwo Naukowo Techniczne, 1996, ISBN: 83-204-2036-9.
- [15] MAEA Międzynarodowa Agencja Atomistyki OECD Agencja Energii Jądrowej, *INES Międzynarodowa Skala Zdarzeń Jądrowych i Radiacyjnych*, <http://www.paa.gov.pl/sites/default/files/archiwalne/arch12.pdf>.
- [16] Ministry of Economy, Trade and Industry, *INES (the International Nuclear and Radiological Event Scale) Rating on the Events in Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station by the Tohoku District - off the Pacific Ocean Earthquake*, <http://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/2444841/www.nisa.meti.go.jp/english/files/en20110412-4.pdf>, dostęp: październik 2018 r.
- [17] Nuclear Emergency Response Headquarters, *Basic Concept and Issues to be Challenged for Rearranging the Restricted Areas and Areas to which Evacuation Orders Have been Issued where Step 2 has been Completed*, 1999.
- [18] Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology and the U.S. Department of Energy, *Results of Airborne Monitoring by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology and the U.S. Department of Energy*, http://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/4000/3180/24/1304797_0506.pdf, 2011.
- [19] *Evacuation areas*, http://www.meti.go.jp/english/earthquake/nuclear/roadmap/evacuation_areas.html, dostęp: luty 2018 r.
- [20] A. Chamberlain, *Radioactive aerosols*, P. G. C. Campbell, J. N. Galloway i R. M. Harrison, red. Cambridge University Press, 1991, ISBN: 0521401215.
- [21] P. Zagrodzki, F. Nicol, M. A. McCoy, J. A. Smyth, D. G. Kennedy, G. J. Beckett i J. R. Arthur, “Iodine deficiency in cattle: Compensatory changes in thyroidal selenoenzymes”, *Research in Veterinary Science*, t. 64, nr. 3, s. 209–211, 1998, ISSN: 00345288. DOI: 10.1016/S0034-5288(98)90127-8.
- [22] P. Krajewski, “Opracowanie i weryfikacja modelu dla oceny dawek od izotopów promieniotwórczych jodu i cezu uwalnianych do środowiska”, prac. dokt., Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej, 1999.
- [23] N. Sanzharova, S. Fesenko i E. Reed, “Processes Governing Radionuclide Transfer to Plants.”, w *Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments*. 2009, 130–131.
- [24] *Relevance to public health*, "<http://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp157-c2.pdf>", dostęp: październik 2018.
- [25] “Toxicological profile for cesium.”, w, Q U.S. DEPARTMENT OF HEALTH AND HUMAN SERVICES Public Health Service Agency for Toxic Substances and Disease Registry., 2004.

- [26] D. Teerstra, P. Cerny i R. Chapman, “Compositional heterogeneity of pollucite from High Grade Dyke, Maskwa Lake, Southeastern Manitoba”, *Canadian Minearologist*, t. 30, s. 687–697, 1992.
- [27] A. Burger i I. Lichtscheidl, “Stable and radioactive cesium: A review about distribution in the environment, uptake and translocation in plants, plant reactions and plants’ potential for bioremediation”, *Science of the Total Environment*, t. 618, s. 1459–1485, 2018, ISSN: 18791026. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2017.09.298.
- [28] N. Yamagata, “The Concentration of Common Cesium and Rubidium in Human Body.”, *Journal of Radiation Research*, t. 3, nr. 1, s. 19–30, 1962. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2017.09.298.
- [29] J. Zheng, K. Tagami, W. Bu, S. Uchida, Y. Watanabe, Y. Kubota, S. Fuma i S. Ihara, “ $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Isotopic Ratio as a New Tracer of Radiocesium Released from the Fukushima Nuclear Accident”, *Environmental Science and Technology*, t. 48, nr. 10, s. 5433–5438, 2014. DOI: 10.1021/es500403h.
- [30] G. Yang, H. Tazoe i M. Yamada, “ ^{135}Cs activity and $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ atom ratio in environmental samples before and after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident.”, *Scientific reports*, t. 6, 2016, ISSN: 2045-2322. DOI: 10.1038/srep24119.
- [31] T. Kubota, Y. Shibahara, T. Ohta, S. Fukutani, T. Fujii, K. Takamiya, S. Mizuno i H. Yamana, “Isotopic Ratio of $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Fukushima Environmental Samples Collected in 2011”, w *Radiological Issues for Fukushima’s Revitalized Future*, T. T., red., Tokyo: Springer, 2014, s. 25–31.
- [32] T. Ohno i Y. Muramatsu, “Determination of radioactive cesium isotope ratios by triple quadrupole ICP-MS and its application to rainwater following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident”, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, t. 29, s. 347–351, 2014. DOI: 10.1039/c3ja50291k.
- [33] W. Bu, L. Tang, X Liu, Z. Wang, M Fukuda, J. Zheng, T. Aono, H. S. i X. Wang, “Ultra-trace determination of the $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ isotopic ratio by thermal ionization mass spectrometry with application to Fukushima marine sediment samples”, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, t. 34, s. 301–309, 2019. DOI: 10.1039/c8ja00380g.
- [34] J. A. Dunne, P. G. Martin, Y. Yamashiki, I. X. Y. Ang, T. B. Scott i D. A. Richards, “Spatial pattern of plutonium and radiocaesium contamination released during the Fukushima Daiichi nuclear power plant disaster”, *Scientific Reports*, t. 8, 2018. DOI: 10.1038/s41598-018-34302-0.
- [35] DOE STANDARD, “A guide of good practices for occupational radiological protection in plutonium facilities”, *U.S. Department of Energy, Washington D.C.*, t. 1128, 2008.
- [36] S. Hecker, “Plutonium and its alloys. From atoms to microstructure”, w *Challenges in Plutonium Science*, t. 26, Los Alamos, New Mexico: Los Alamos National Laboratory, 2000, s. 290–335.
- [37] E. Kmetko i J. Smith, “Magnetism or bonding: A nearly periodic table of transition elements”, *Journal of the Less Common Metals*, t. 90, nr. 1, s. 83–88, 1983.
- [38] N. Cooper, “The plutonium challenge- Environmental issues”, w *Challenges in Plutonium Science*, t. 26, Los Alamos, New Mexico: Los Alamos National Laboratory, 2000, s. 36–47.

- [39] G. Voeltz, "Plutonium and health. How great is the risk?", w *Challenges in Plutonium Science*, t. 26, Los Alamos, New Mexico: Los Alamos National Laboratory, 2000, s. 74–89.
- [40] ICRP publication 48, "The metabolism of plutonium and related elements", *Annals of the ICRP*, t. 16, nr. 2-3, 1986.
- [41] W. Moss i R. Eckhardt, "The human plutonium injection experiments", w *Los Alamos Science*, t. 23, Los Alamos, New Mexico: Los Alamos National Laboratory, 1995, s. 177–233.
- [42] D. C. Hoffman, F. O. Lawrence, J. L. Mewherter i F. M. Rourke, "Detection of Plutonium-244 in Nature", *Nature*, t. 234, s. 132–134, 1971.
- [43] R. Kierepko, "Identyfikacja aktualnych źródeł plutonu w powietrzu", prac. dokt., Instytut Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk, 2010.
- [44] J. Mietelski, "Spektrometria jądrowa w badaniu biodostępności radionuklidów z „gorących cząstek typu paliwowego” w środowisku leśnym”, *IFJ Krakow*, t. 1921/B, 2003.
- [45] Hebert, A., *Applied Reactor Physics*. Presses internationales Polytechnique, 2009, ISBN: 978-2-553-01436-9.
- [46] A. Ghiorso, R. A. James, L. O. Morgan i G. T. Seaborg, "Preparation of Transplutonium Isotopes by Neutron Irradiation", *Physical Review*, t. 78, s. 472–, 1950.
- [47] G. Seaborg, "Transuranium elements: the synthetic actinides", w *One Hundred Years after the Discovery of Radioactivity*, R. Oldenburg Verlag Munchen, 1996, s. 69–90.
- [48] J. F. McInroy, R. L. Kathren i M. J. Swint, "The Concentration of Common Cesium and Rubidium in Human Body.", *Radiation Protection Dosimetry*, t. 26, nr. 1-4, s. 151–158, 1989. DOI: 10.1093/oxfordjournals.rpd.a080396.
- [49] CTBTO Preparatory Commission, "<https://www.ctbto.org/nuclear-testing/>", dostęp: październik 2018.
- [50] N.-O. Bergkvist i R. Ferm, "Nuclear Explosions 1945-1998", w, t. FOA-R—00-01572-180-SE, Defence Research Establishment Division of Systems i Underwater Technology SE-172 90 STOCKHOLM Sweden, 2000.
- [51] P. Janowski, "Detekcja kryptonu-85 i radioizotopów ksenonu w powietrzu atmosferycznym", prac. dokt., Instytut Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk, 2015.
- [52] *Nuclear Explosions*, "<http://www.radicalcartography.net/index.html?nuclear>", dostęp: luty 2018.
- [53] *Worldwide nuclear testing.svg: Hairy Dude*, https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Worldwide_nuclear_testing_multilang.svg, data source: Oklahoma Geological Survey Nuclear Explosion Catalog [CC BY-SA 2.5 (<https://creativecommons.org/licenses/by-sa/2.5>)], dostęp: marzec 2017.
- [54] UNSCEAR, *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, ser. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. New York: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000, t. Annex C.
- [55] B. Myasoedov i F. Pavlotskaya, "Measurement of Radioactive Nuclides in the Environment", *ANALYST*, t. 114, nr. March, s. 255–263, 1989.

- [56] K. Kożuchowski, “Meteorologia i klimatologia”, *Wydawnictwo Naukowe PWN, Warszawa*, 2007.
- [57] Práválie, R., “Nuclear Weapons Tests and Environmental Consequences: A Global Perspective”, *Ambio*, t. 43, nr. 6, s. 729–744, 2014, ISSN: 00447447. DOI: 10.1007/s13280-014-0491-1.
- [58] G. J. Hancock, S. G. Tims, L. K. Fifield i I. T. Webster, “The release and persistence of radioactive anthropogenic nuclides”, *Geological Society, London, Special Publications*, t. 395, nr. 1, s. 265–281, 2014, ISSN: 0305-8719. DOI: 10.1144/SP395.15.
- [59] M. Aoyama, K. Hirose i Y. Igarashi, “Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests ^{137}Cs fallout”, *Journal of Environmental Monitoring*, t. 8, nr. 4, s. 431–438, 2006, ISSN: 14640325. DOI: 10.1039/b512601k.
- [60] J. Takada, M. Hoshi, S. Sawada i M. Sakanoue, “Uranium Isotopes in Hiroshima „Black Rain” Soil”, *Journal of Radiation Research*, t. 24, s. 229–236, 1983.
- [61] A. Kudo, Y. Mahara, D. C. Santry, S. Miyahara i J. P. Garrec, “Geographical distribution of fractioned local fallout from the Nagasaki A-bomb”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 14, nr. 4, s. 305–316, 1991, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/0265-931X(91)90021-7.
- [62] A. Kudo, J. Zheng, R. M. Koerner, D. A. Fisher, D. C. Santry, Y. Mahara i M. Sugahara, “Global transport rates of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ originating from the Nagasaki A-bomb in 1945 as determined from analysis of Canadian Arctic ice cores”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 40, nr. 3, s. 289–298, 1998, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/S0265-931X(97)00023-4.
- [63] UNSCEAR, *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, ser. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. New York: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993, t. Annex B.
- [64] R. Leifer, Z. Juzdan, W. R. Kelly, J. Fassett i K. R. Eberhardt, “Detection of Uranium from Cosmos-1402 in the Stratosphere”, *Science*, t. 238, nr. 4826, s. 512–514, 1987.
- [65] E. Hardy, P. Krey i H. Volchok, “Global inventory and distribution of fallout plutonium”, *Nature*, t. 241, s. 444–445, 1973.
- [66] W. Gummer, F. Campbell, G. Knight i J. Ricard, “Cosmos 954. The occurrence and nature of recovered debris”, w, t. INFO-0006, Atomic Energy Control Board, 1980.
- [67] S. Salaymeh, S. C. Lee i K. Kuroda, “Plutonium fallout from the nuclear-powered satellite Cosmos-1402”, t. 111, nr. 1, s. 147–155, 1987.
- [68] IAEA, *Report on the preliminary fact finding mission following the accident at the nuclear fuel processing facility in Tokaimura, Japan*, 1999.
- [69] “Analysis of Three Mile Island - Unit 2 Accident”, w, t. NSAC-80-1, Nuclear Safety Analysis Center, Electric Power Research Institute, 1980.
- [70] UNSCEAR, *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, ser. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. New York: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000, t. Annex J.
- [71] Atwood, D.A., red., *Radionuclides in the environment*. John Wiley & Sons Ltd., 2010.

- [72] K. Komura i S. Masanobu, “Environmental samples based on the measurements of Lx / a-ray activity ratio”, *Health physics*, t. 46, nr. 6, s. 1213–1219, 1984.
- [73] M. Yamamoto, “Discrimination of the Plutonium due to Atomic Explosion in 1945 from Global Fallout Plutonium in Nagasaki Soil”, *Journal of Radiation Research*, t. 24, s. 250–258, 1983.
- [74] S. H. Lee, P. P. Povinec, E. Wyse, M. K. Pham, G. H. Hong, C. S. Chung, S. H. Kim i H. J. Lee, “Distribution and inventories of ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am and Pu isotopes in sediments of the Northwest Pacific Ocean”, *Marine Geology*, t. 216, nr. 4, s. 249–263, 2005, ISSN: 00253227. DOI: 10.1016/j.margeo.2005.02.013.
- [75] P. Lindahl, S. H. Lee, P. Worsfold i M. Keith-Roach, “Plutonium isotopes as tracers for ocean processes: A review”, *Marine Environmental Research*, t. 69, nr. 2, s. 73–84, 2010, ISSN: 01411136. DOI: 10.1016/j.marenvres.2009.08.002.
- [76] M. Thein, S. Ballestra, A. Yamato i R. Fukai, “Delivery of transuranic elements by rain to the Mediterranean Sea”, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, t. 44, nr. 8, s. 1091–1097, 1980, ISSN: 00167037. DOI: 10.1016/0016-7037(80)90063-0.
- [77] H. Kudryashov, V. Mironov i E. Konoplya, “The Contamination of Belarus Territory by Transuranium Elements”, w *Radionuclides and Heavy Metals in Environment*, M. Frontasyeva, V. Perelygin i P. Vater, red., Springer-Science+Business Media, B.V., 2001, s. 127–134.
- [78] M. Otsuji-Hatori, Y. Igarashi i K. Hirose, “Preparation of a reference fallout material for activity measurements”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 31, nr. 2, s. 143–155, 1996, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/0265-931X(95)00048-F.
- [79] L. Kashkarov, V. Tcherkezian, G. Kalinina, A. Ivliev, T. Shalaeva i P. Korovaikov, “Chernobyl „hot particles”: radionuclide composition and contribution in the total soil radioactivity”, w *Radionuclides and Heavy Metals in Environment*, M. Frontasyeva, V. Perelygin i P. Vater, red., Springer-Science+Business Media, B.V., 2001, s. 43–48.
- [80] K. Hirose, Y. Igarashi, M. Aoyama i T. Miyao, “Long-term trends of plutonium fallout observed in Japan”, w *Plutonium in the Environment*, A. Kudo, red., ELSEVIER, 2000, s. 251–266.
- [81] D. Pittauer, P. Roos, J. Qiao, W. Geibert, M. Elvert i H. W. Fischer, “Pacific Proving Grounds radioisotope imprint in the Philippine Sea sediments”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 186, s. 131–141, 2018, ISSN: 18791700. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2017.06.021.
- [82] Garbalewski, C., red., *Fizyka aerozolowej aktywności morza*. Instytut Oceanologii PAN, Sopot, 1999.
- [83] <https://marinedebris.noaa.gov/movement/how-debris-accumulates>, dostęp: październik 2018.
- [84] N. Vajda i C. Kim, “Determination of Pu isotopes by alpha spectrometry: a review of analytical methodology”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, t. 283, nr. 1, s. 203–223, 2009.
- [85] N. Vajda, P. Martin i C. Kim, “Alpha spectrometry”, w *Handbook of Radioactivity Analysis*, M. L’Annunziata, red., Academic Press., 2012, s. 363–422.

- [86] A. Strzałkowski, “Wstęp do fizyki jądra atomowego”, *Wydawnictwo Naukowe PWN*, Warszawa, 1978.
- [87] Loveland, W.D. and Morrissey, D.J. and Seaborg, G.T., red., *Modern Nuclear Chemistry*. John Wiley & Sons, Inc., 2006.
- [88] S. Biswas, “On the Geiger-Nuttall Relationship”, *Physical Review*, t. 75, s. 530–532, 3 1949. DOI: 10.1103/PhysRev.75.530.
- [89] Gilmore, G. and Hemingway, J., red., *Practical Gamma-Ray*. John Wiley & Sons, Inc., 2008.
- [90] J. Verplancke, P. F. Fettweis, R. Venkatamaran, B. Young i H. Schwenn, “Semiconductor Detectors”, w *Handbook of Radioactivity Analysis*, M. L’Annunziata, red., Academic Press., 2012, s. 299–362.
- [91] E. Andreotti, *Underground radioactivity measurements at the HADES Ultra Low-level Gamma Spectrometry laboratory*, <https://indico.cern.ch/event/199223/contributions/378107/attachments/296004/413624/Aspera-Andreotti.pdf>, dostęp: październik 2018.
- [92] P. Jodłowski, “Spektrometria promieniowania gamma prób środowiskowych; nuklidy promieniotwórcze w środowisku przyrodniczym Górców”, prac. dokt., Akademia Górniczo Hutnicza, Wydział Fizyki i Informatyki Stosowanej, 2005.
- [93] I. Radulescu, A. M. Blebea-Apostu, R. M. Margineanu i N. Mocanu, “Background radiation reduction for a high-resolution gamma-ray spectrometer used for environmental radioactivity measurements”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, t. 715, s. 112–118, 2013, ISSN: 01689002. DOI: 10.1016/j.nima.2013.03.024.
- [94] M. J. Daza, B. Quintana, M. García-Talavera i F. Fernández, “Efficiency calibration of a HPGe detector in the [46.54-2000] keV energy range for the measurement of environmental samples”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, t. 470, nr. 3, s. 520–532, 2001, ISSN: 01689002. DOI: 10.1016/S0168-9002(01)00798-7.
- [95] F. W. Lengemann i J. H. Woodburn, “Whole Body Counters”, w, U.S. Atomic Energy Commission. Division of Technical Information, 1964, s. 1–36.
- [96] *In-vivo counting*, <https://www.mirion.com/products/in-vivo-counting>, dostęp: październik 2018.
- [97] *Whole body spectrometer SEG-10P (whole body counter)*, <https://www.radek.ru/en/product/Spectrometers-and-radiometers-of-radiation/48/>, dostęp: październik 2018.
- [98] *Whole body counter (WBC)*, <https://vanderbiltnuclearmedicine.com>, dostęp: październik 2018.
- [99] *In-vivo whole body measurement of internal radioactivity in the Nordic countries*, <http://www.nks.org/scripts/getdocument.php?file=111010111120246>, dostęp: luty 2014, 2011.
- [100] M. Miyazaki, A. Ohtsuru i T. Ishikawa, “An overview of internal dose estimation using whole-body counters in Fukushima prefecture”, *Fukushima Journal of Meidical Science*, t. 60, nr. 1, s. 95–100, 2014, ISSN: 0016-2590. DOI: 10.5387/fms.2014-10.

- [101] NCBJ, *Licznik promieniowania całego ciała*, <http://old.ncbj.gov.pl/node/2162>.
- [102] J. Ośko, N. Golnik i T. Pliszczyński, “Radiation Protection Dosimetry”, *Cases of post-accident contamination with iodine I-131, registered in the Institute of Atomic Energy POLATOM in Świerk, Poland.*, t. 144, nr. 1/4, s. 560–563, 1987.
- [103] R. Kierepko, S. Sahoo, M. Hosoda, S. Tokonami, A. Sorimachi, E. Kim i M. Ohno, “ $^{238}\text{Pu}/(^{239+240}\text{Pu})$ activity ratio as an indicator of Pu originating from the FDNPP accident in the terrestrial environment of Fukushima Prefecture”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 196, nr. November, s. 133–140, 2019, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2018.11.006.
- [104] A. Sakaguchi, P. Steier, Y. Takahashi i M. Yamamoto, “Isotopic compositions of ^{236}U and Pu isotopes in “black substances” collected from roadsides in Fukushima prefecture: Fallout from the Fukushima Dai-Ichi nuclear power plant accident”, *Environmental Science and Technology*, t. 48, nr. 7, s. 3691–3697, 2014, ISSN: 15205851. DOI: 10.1021/es405294s.
- [105] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, S. Ochiai, T. Takada, K. Hamataka, T. Murakami i S. Nagao, “Isotopic Pu, Am and Cm signatures in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 132, s. 31–46, 2014, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2014.01.013.
- [106] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, S. Ochiai i T. Imanaka, “Isotopic compositions of transuranic nuclides released by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident: With emphasis on Cm isotopes”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, t. 300, nr. 3, s. 1045–1052, 2014, ISSN: 15882780. DOI: 10.1007/s10967-014-3003-7.
- [107] L. A. Currie, “Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination: Application to Radiochemistry”, *Analytical Chemistry*, t. 40, s. 586–593, 1968, ISSN: 15206882. DOI: 10.1021/ac60259a007.
- [108] J. Mietelski, “P.I.M.P. - konwersacyjny program analiz widm promieniowania gamma dla komputera PC”, *IFJ Krakow*, t. 1435/S, 1989.
- [109] J. W. Mietelski, R. Kierepko, E. Łokas, A. Cwanek, K. Kleszcz, E. Tomankiewicz, T. Mróz, R. Anczkiewicz, M. Szałkowski, B. Wąs, M. Bartyzel i R. Misiak, “Combined, sequential procedure for determination of ^{137}Cs , ^{40}K , ^{63}Ni , ^{90}Sr , $^{230,232}\text{Th}$, $^{234,238}\text{U}$, ^{237}Np , $^{238,239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am applied for study on contamination of soils near Żarnowiec Lake (northern Poland)”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, t. 310, nr. 2, s. 661–670, 2016, ISSN: 15882780. DOI: 10.1007/s10967-016-4835-0.
- [110] Lederer, M., red., *The Periodic Table of Chromatographers*. John Wiley & Sons, Inc., 1992.
- [111] C. W. Sill, “Precipitation of actinides as fluorides or hydroxides for high-resolution alpha spectrometry”, *Nuclear and Chemical Waste Management*, t. 7, nr. 3-4, s. 201–215, 1987, ISSN: 0191815X. DOI: 10.1016/0191-815X(87)90066-0.
- [112] *UTEVA Resin*, <https://www.eichrom.com/eichrom/products/uteva-resin/>, dostęp: luty 2016.

- [113] *TEVA Resin*, <http://www.triskem-international.com/scripts/files/5b0bc8e59c0aa1.13427664/TEVA\%20RESIN-EN.pdf>, dostęp: luty 2016.
- [114] *TRU Resin*, <http://www.triskem-international.com/scripts/files/5b0bc8e8d03117.86838612/TRU\%20RESIN-EN.pdf>, dostęp: luty 2016.
- [115] N. Gharibyan, A. Dailey, D. R. McLain, E. M. Bond, W. A. Moody, S. Happel i R. Sudowe, “Extraction Behavior of Americium and Curium on Selected Extraction Chromatography Resins from Pure Acidic Matrices”, *Solvent Extraction and Ion Exchange*, t. 32, nr. 4, s. 391–407, 2014, ISSN: 15322262. DOI: 10.1080/07366299.2014.884888.
- [116] R. Kierepko, J. Mietelski, Z. Ustrnul, R. Anczkiewicz, H. Wershofen, Z. Holgye, J. Kapała i K. Isajenko, “Plutonium isotopes in the atmosphere of Central Europe: Isotopic composition and time evolution vs. circulation factors”, *Science of the Total Environment*, t. 569-570, 2016, ISSN: 18791026. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2016.05.222.
- [117] TEPCO, *Fukushima Daiichi Nuclear Power Station: Pu analysis result in the soil*. http://www.tepco.co.jp/en/press/corp-com/release/betu11_e/images/110414e11.pdf, dostęp: marzec 2018.
- [118] W. Karniewicz, J. Liniecki i A. Kosterkiewicz, “Caesium–137 in population of Łódź (Poland) in 1963 and 1964”, *Nukleonika*, t. 10, s. 35–49, 1965.
- [119] J. W. Mietelski, P. Janowski, R. Kierepko, R. Hajduk, J. Bogacz, J. Jurkowski i E. Ochab, “A Whole-Body Spectrometer (WBS) at the institute of nuclear physics, kraków - design and results for Polish citizens visiting Japan during the Fukushima accident”, *Nukleonika*, t. 58, nr. 4, s. 519–525, 2013, ISSN: 00295922.
- [120] G. Krajewska i P. Krajewski, “Thyroid monitoring system for measurement of iodine content in thyroid of occupationally exposed personnel”, *Radiation Protection Dosimetry*, t. 89, s. 215–220, 2000. DOI: 10.1093/oxfordjournals.rpd.a033067.
- [121] J. Ośko, N. Golnik i T. Pliszczyński, “Uncertainties in determination of ^{131}I activity in thyroid gland”, *Radiation Protection Dosimetry*, t. 125, nr. 1-4, s. 516–519, 2007, ISSN: 01448420. DOI: 10.1093/rpd/ncm158.
- [122] M. Schlagbauer, E. Hrncsek, S. Rollet, H. Fischer, A. Brandl i P. Kindl, “Uncertainty budget for a whole body counter in the scan geometry and computer simulation of the calibration phantoms”, *Radiation Protection Dosimetry*, t. 125, nr. 1-4, s. 149–152, 2007, ISSN: 01448420. DOI: 10.1093/rpd/ncm206.
- [123] Bochenek, A. and Reicher, M., red., *Anatomia człowieka. X*. Wydawnictwo Lekarskie PZWL, 2014, t. II. Trzewa.
- [124] Halenka, M. and Frysak, Z., red., *Atlas of thyroid ultrasonography*. Springer, 2017.
- [125] R. Kierepko, P. Janowski i M. Grochowska, “Variation of counting efficiency in determination of ^{131}I activity in the thyroid gland as a result of its position relative to the detector”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, t. 300, nr. 2, s. 825–828, 2014, ISSN: 15882780. DOI: 10.1007/s10967-014-3051-z.

- [126] M. Grochowska, “Kalibracja Spektrometru Całego Ciała za pomocą fantomu o zmiennej geometrii”, prac. mag., Akademia Górniczo Hutnicza, Wydział Fizyki i Informatyki Stosowanej, 2013.
- [127] J. Meija, T. B. Coplen, M. Berglund, W. A. Brand, P. De Bièvre, M. Gröning, N. E. Holden, J. Irrgeher, R. D. Loss, T. Walczyk i T. Prohaska, “Isotopic compositions of the elements 2013 (IUPAC Technical Report)”, *Pure and Applied Chemistry*, t. 88, nr. 3, s. 293–306, 2016, ISSN: 13653075. DOI: 10.1515/pac-2015-0503.
- [128] Mizerski, Witold, red., *Tablice chemiczne*. Adamantan, 2004.
- [129] Nowak, Ewa, red., *Atlas antropometryczny dla populacji polskiej - dane do projektowania*. Instytut Wzornictwa Przemysłowego, 2000.
- [130] UNSCEAR, *Report of the Task Group on Reference Man*. PERGAMON PRESS, 1975, t. 23.
- [131] M. Eisenbud i T. Gesell, *Environmental Radioactivity from Natural, Industrial and Military Sources*. Academic Press, 1997.
- [132] J. Kondracki, *Geografia regionalna Polski*. Warszawa: Wydawnictwo Naukowe PWN, 1997.
- [133] L. Kowanetz, *Stosunki anemologiczne. Klimat Krakowa w XX w.* Kraków: Instytut Geografii i Gospodarki Przestrzennej Uniwersytetu Jagiellońskiego, 2007.
- [134] L. Ośródk, J. Godłowska, M. Hajto, E. Krajny, W. Rozwoda i M. Wojtylak, *Określenie warunków anemologicznych dla obszaru Krakowa na podstawie danych z sieci obserwacyjno pomiarowej IMGW*, dostęp: październik 2018, Kraków, 2010.
- [135] K. Kozak, M. Michalik i W. Wilczyńska Michalik, “Monitoring of fine-dispersed components of the atmospheric aerosols in Kraków; results of isotopic and geochemical studies”, w *II International Scientific Conference*, T. T. Suchecki, J. Kapala i H. Kumazawa, red., 1998, s. 203–205.
- [136] J. W. Mielicki, S. Grabowska, T. Nowak, J. Bogacz, P. Gaca, M. Bartyzel i M. Budzanowski, “Inhalation dose due to presence of ^{131}I in air above septic tank system of an endocrinology hospital”, *Radiation Protection Dosimetry*, t. 117, nr. 4, s. 395–401, 2005, ISSN: 01448420. DOI: 10.1093/rpd/nci306.
- [137] R. Kierepko, J. Mielicki, W. Borowiec, S. Tarasiewicz, S. Blazej i J. Kapala, “Plutonium traces in atmospheric precipitation and in aerosols from Krakow and Bialystok”, *Radiochimica Acta*, t. 97, nr. 4-5, 2009, ISSN: 00338230. DOI: 10.1524/ract.2009.1606.
- [138] J. W. Mielicki, R. Kierepko, K. Brudecki, P. Janowski, K. Kleszcz i E. Tomankiewicz, “Long-range transport of gaseous ^{131}I and other radionuclides from Fukushima accident to Southern Poland”, *Atmospheric Environment*, t. 91, s. 137–145, 2014. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2014.03.065.
- [139] J. W. Mielicki i S. Blazej, “Cosmogenic ^{22}Na , ^7Be and terrestrial ^{137}Cs , ^{40}K radionuclides in ground level air samples collected weekly in Krakow (Poland) over years 2003–2006”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, t. 300, s. 747–756, 2014. DOI: 10.1007/s10967-014-3049-6.

- [140] J. Mietelski, E. Nalichowska, E. Tomankiewicz, K. Brudecki, P. Janowski i R. Kierepko, “Gamma emitters in atmospheric precipitation in Krakow (Southern Poland) during the years 2005–2015”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 166, s. 10–16, 2017, ISSN: 18791700. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2016.02.010.
- [141] O. Masson, A. Baeza, J. Bieringer, K. Brudecki, S. Bucci, M. Cappai, F. P. Carvalho, O. Connan, C. Cosma, A. Dalheimer, D. Didier, G. Depuydt, L. E. De Geer, A. De Vismes, L. Gini, F. Groppi, K. Gudnason, R. Gurriaran, D. Hainz, O. Halldórsson, D. Hammond, O. Hanley, K. Holeý, Z. Homoki, A. Ioannidou, K. Isajenko, M. Jankovic, C. Katzlberger, M. Kettunen, R. Kierepko, R. Kontro, P. J. M. Kwakman, M. Lecomte, L. Leon Vintro, A. P. Leppänen, B. Lind, G. Lujanienė, P. Mc Ginnity, C. M. Mahon, H. Malá, S. Manenti, M. Manolopoulou, A. Mattila, A. Mairing, J. W. Mietelski, B. Moller, S. P. Nielsen, J. Nikolic, R. M. W. Overwater, S. E. Pálsson, C. Papastefanou, I. Penev, M. K. Pham, P. P. Povinec, H. Ramebäck, M. C. Reis, W. Ringer, A. Rodriguez, P. Rulík, P. R. J. Saey, V. Samsonov, C. Schlosser, G. Sgorbati, B. V. Silobritiene, C. Söderström, R. Sogni, L. Solier, M. Sonck, G. Steinhauser, T. Steinkopff, P. Steinmann, S. Stoulos, I. Sýkora, D. Todorovic, N. Tooloutalaie, L. Tositti, J. Tschiersch, A. Ugron, E. Vagena, A. Vargas, H. Wershofen i O. Zhukova, “Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-Ichi nuclear reactors by European Networks”, *Environmental Science and Technology*, t. 45, nr. 18, s. 7670–7677, 2011. DOI: 10.1021/es2017158.
- [142] Environmental Radioactivity and Radiation in Japan, *Radioactivity Survey Data in Japan. Environmental and Dietary Materials*. http://www.kankyo-hoshano.go.jp/study_flash.jsp?runmode=2, dostęp: marzec 2018.
- [143] *Radioactivity Survey Data in Japan. Environmental and Dietary Materials*. http://www.kankyo-hoshano.go.jp/07/rsd_lib/2010_no_145.pdf, Chiba, Japan, 2010.
- [144] Y. Shibahara, T. Kubota, T. Fujii, S. Fukutani, K. Takamiya, M. Konno, S. Mizuno i H. Yamana, “Determination of isotopic ratios of plutonium and uranium in soil samples by thermal ionization mass spectrometry”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, t. 307, nr. 3, s. 2281–2287, 2016, ISSN: 15882780. DOI: 10.1007/s10967-015-4551-1.
- [145] J. Zheng, K. Tagami, Y. Watanabe, S. Uchida, T. Aono, N. Ishii, S. Yoshida, Y. Kubota, S. Fuma i S. Ihara, “Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident”, *Scientific Reports*, t. 2, nr. 304, 2012, ISSN: 2045-2322. DOI: 10.1038/srep00304.
- [146] T. Imanaka, S. Endo, M. Sugai, S. Ozawa, K. Shizuma i M. Yamamoto, “Early radiation survey of Iitate Village, which was heavily contaminated by the Fukushima Daiichi accident, conducted on 28 and 29 March 2011”, *Health Physics*, t. 102, nr. 6, s. 680–686, 2012. DOI: 10.1097/HP.0b013e31824cfe18.
- [147] M. Yamamoto, T. Takada, S. Nagao, T. Koike, K. Shimada, M. Hoshi, K. Zhumadilov, T. Shima, M. Fukuoka, T. Imanaka, S. Endo, A. Sakaguchi i S. Kimura, “An early survey of the radioactive contamination of soil due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, with emphasis on plutonium analysis”, *Geochemical Journal*, t. 46, nr. 4, s. 341–353, 2012, ISSN: 00167002. DOI: 10.2343/geochemj.2.0215.

- [148] MEXT, *Results of the nuclide analysis of plutonium 238, 239+240 and 241 (second survey) by MEXT*. 2012, t. 23, s. 1–13.
- [149] UNSCEAR, *Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly with Scientific Annexes*, ser. UNSCEAR 2013. New York: United Nations, 2014, t. 1.
- [150] G. Yang, H. Tazoe, K. Hayano, K. Okayama i M. Yamada, “Isotopic compositions of ^{236}U , ^{239}Pu , and ^{240}Pu in soil contaminated by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident”, *Scientific Reports*, t. 7, nr. 1, s. 13 619, 2017, ISSN: 2045-2322. DOI: 10.1038/s41598-017-13998-6.
- [151] TEPCO, *Fukushima Daiichi Nuclear Power Station: Pu analysis result in the soil*. <http://www.tepco.co.jp/en/search/index-e.html?r=&o=%5Bobject+Object%5D&p=&c=%5Bobject+Object%5D&q=Pu+soil&l=0>, dostęp: wrzesień 2016 r.
- [152] K. Saito i S. Ogawa, “Radioactive Pollution Estimate for Fukushima Nuclear Power Plant By a Particle Model”, *ISPRS - International Archives of the Photogrammetry, Remote Sensing and Spatial Information Sciences*, t. XLI-B8, nr. July, s. 163–168, 2016, ISSN: 2194-9034. DOI: 10.5194/isprsarchives-XLI-B8-163-2016.
- [153] TEPCO, *Fukushima Daiichi Nuclear Power Station: Am and Cm analysis results in the soil*, <https://f-archive.jaea.go.jp/index.php>, dostęp: październik 2018.
- [154] M. Yamamoto, K. Komura i M. Sakanoue, “ ^{241}Am and Plutonium in Japanese Rice-field Surface Soils”, *Journal of Radiation Research*, t. 24, s. 237–249, 1983.
- [155] J. Imoto, A. Ochiai, G. Furuki, M. Suetake, R. Ikehara, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, K. Nanba, T. Ohnuki, G. Law, B. Grambow, R. Ewing i S. Utsunomiya, “Isotopic signature and nano- texture of cesium-rich micro- particles : Release of uranium and fission products from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant”, *Scientific Reports*, t. 7, nr. 5409, 2017. DOI: 10.1038/s41598-017-05910-z.
- [156] Y. Abe, Y. Iizawa, Y. Terada, K. Adachi, Y. Igarashi i I. Nakai, “Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive microparticles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analyses”, *Analytical Chemistry*, t. 86, s. 8521–8525, 2014, ISSN: 15206882. DOI: 10.1021/ac501998d.
- [157] H. Nagai, M. Chino, H. Terada i G. Katata, “Atmospheric Dispersion Simulations of Radioactive Materials Discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Due to Accident: Consideration of Deposition Process”, w *Reconstruction of Early Internal Dose in the TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident*, O. Kurihara, K. Akahane, S. Fukuda, N. Miyahara i S. Yonai, red., ser. Proc. 1st NIRS Symp. 2012, Chiba: National Institute of Radiological Sciences, 2012, s. 137–138.
- [158] Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology, *Results of Airborne Monitoring Survey by MEXT in Iwate, Shizuoka, Nagano, Yamanashi, Gifu, and Toyama Prefectures, and Revision of the Past Airborne Monitoring Results by Refracting the Influences of Natural Radionuclides*, https://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/4000/3177/24/1270_111114.pdf, dostęp: marzec 2018.

- [159] UNSCEAR, *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, ser. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. New York: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000, t. Annex B.
- [160] S. Merz, K. Shozugawa i G. Steinhauser, “Analysis of Japanese radionuclide monitoring data of food before and after the Fukushima nuclear accident”, *Environmental Science and Technology*, t. 49, nr. 5, s. 2875–2885, 2015, ISSN: 15205851. DOI: 10.1021/es5057648.
- [161] T. Wada, Y. Nemoto, S. Shimamura, T. Fujita, T. Mizuno, T. Sohtome, K. Kamiyama, T. Morita i S. Igarashi, “Effects of the nuclear disaster on marine products in Fukushima”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 124, s. 246–254, 2013, ISSN: 18791700. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2016.06.028.
- [162] T. Wada, T. Fujita, Y. Nemoto, S. Shimamura, T. Mizuno, T. Sohtome, K. Kamiyama, K. Narita, M. Watanabe, N. Hatta, Y. Ogata, T. Morita i S. Igarashi, “Effects of the nuclear disaster on marine products in Fukushima: An update after five years”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 164, s. 312–324, 2016, ISSN: 18791700. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2016.06.028.
- [163] M. Hori, T. Saito i K. Shozugawa, “Source evaluation of ^{137}Cs in foodstuffs based on trace ^{134}Cs radioactivity measurements following the Fukushima nuclear accident”, *Scientific Reports*, t. 8, nr. 1, s. 16 806, 2018, ISSN: 2045-2322. DOI: 10.1038/s41598-018-35183-z.
- [164] N. Matsuda, T. Kudo, M. Yamauchi, M. Miura, N. Morita i T. Usa, “Internal radioactivity of temporary residents in Fukushima within one year after the radiological accident”, *Journal of Environmental and Occupational Science*, t. 2, nr. 3, s. 123, 2013, ISSN: 2146-8311. DOI: 10.5455/jeos.20131012104058.
- [165] M. A Lopez, P. Fojtik, D. Franck, J. Osko, U. Gerstmann, C. Scholl, A. L. Lebacq, B. Breustedt i L. del Risco Norrlid, “Lessons Learned From the Eurados Survey on Individual Monitoring Data and Internal Dose Assessments of Foreigners Exposed in Japan Following the Fukushima Daiichi Npp Accident”, *Radiation Protection Dosimetry*, t. 170, nr. 1-4, s. 402–406, 2015, ISSN: 0144-8420. DOI: 10.1093/rpd/ncv510.
- [166] T. Tsuruda, “Nuclear power plant explosions at Fukushima-Daiichi”, *Procedia Engineering*, t. 62, s. 71–77, 2013, ISSN: 18777058. DOI: 10.1016/j.proeng.2013.08.045.
- [167] G. Rolph, A. Stein i B. Stunder, “Real-time Environmental Applications and Display sYstem: READY”, *Environmental Modelling and Software*, t. 95, s. 210–228, 2017, ISSN: 13648152. DOI: 10.1016/j.envsoft.2017.06.025.
- [168] G. Lujaniene, S. Byčėnkiene, P. P. Povinec i M. Gera, “Radionuclides from the Fukushima accident in the air over Lithuania: Measurement and modelling approaches”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 114, s. 71–80, 2012, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2011.12.004.
- [169] P. Thakur, S. Ballard i R. Nelson, “An overview of Fukushima radionuclides measured in the northern hemisphere”, *Science of the Total Environment*, t. 458-460, s. 577–613, 2013, ISSN: 00489697. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2013.03.105.

- [170] A. P. Leppänen, A. Mattila, M. Kettunen i R. Kontro, “Artificial radionuclides in surface air in Finland following the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 126, s. 273–283, 2013, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2013.08.008.
- [171] P. Thakur, S. Ballard i R. Nelson, “Radioactive fallout in the United States due to the Fukushima nuclear plant accident”, *Journal of Environmental Monitoring*, t. 14, nr. 5, s. 1317–1324, 2012, ISSN: 14640325. DOI: 10.1039/c2em11011c.
- [172] R. S. Cambrey, Cawse, P. A., J. A. Garland, J. A. B. Gibson, P. Johnson, G. N. J. Lewis, D. Newton, L. Salmon i B. O. Wade, “Observations on radioactivity from the Chernobyl accident”, *Nuclear Energy*, nr. 26, s. 77–101, 1987.
- [173] Environmental Modelling for RAdiation Safety (EMRAS) Programme, *The Chernobyl I-131 Release: Model Validation and Assessment of the Countermeasure Effectiveness*, https://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TE_1678_CD/Reports/Theme_1_WorkingGroup3\%28Chernobyl_I-131_Release\%29/The\%20Chernobyl\%20I-131Release-ModelValidationandAssessment.pdf.
- [174] M. Clemenza, E. Fiorini, E. Previtali i E. Sala, “Measurement of airborne ^{131}I , ^{134}Cs and ^{137}Cs due to the Fukushima reactor incident in Milan (Italy)”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 114, s. 113–118, 2011, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2011.12.012. eprint: arXiv:1106.4226v1.
- [175] T. Doi, K. Masumoto, A. Toyoda, A. Tanaka, Y. Shibata i K. Hirose, “Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: Characteristics of the radionuclides derived from Fukushima”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 122, s. 55–62, 2013, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2013.02.001.
- [176] M. Długosz-Lisiecka i H. Bem, “Aerosol residence times and changes in radioiodine-131I and radiocaesium-137Cs activity over Central Poland after the Fukushima-Daiichi nuclear reactor accident”, *Journal of Environmental Monitoring*, t. 14, nr. 5, s. 1483–1489, 2012, ISSN: 14640325. DOI: 10.1039/c2em00014h.
- [177] N. Kaneyasu, H. Ohashi, F. Suzuki, T. Okuda i F. Ikemori, “Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident”, *Environmental Science and Technology*, t. 46, nr. 11, s. 5720–5726, 2012, ISSN: 0013936X. DOI: 10.1021/es204667h.
- [178] A. Baeza, J. A. Corbacho, A. Rodríguez, J. Galván, R. García-Tenorio, G. Manjón, J. Mantero, I. Vioque, D. Arnold, C. Grossi, I. Serrano, I. Vallés i A. Vargas, “Influence of the Fukushima Dai-ichi nuclear accident on Spanish environmental radioactivity levels”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 114, s. 138–145, 2012, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2012.03.001.
- [179] F. Piñero García i M. A. Ferro García, “Traces of fission products in southeast Spain after the Fukushima nuclear accident”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 114, s. 146–151, 2012, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2012.01.011.
- [180] A. Ioannidou, S. Manenti, Luigi Gini i F. Groppi, “Fukushima fallout at Milano, Italy”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 114, s. 119–125, 2012, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2012.01.006.

- [181] D. Pittauerová, B. Hettwig i H. W. Fischer, “Fukushima fallout in Northwest German environmental media”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 102, nr. 9, s. 877–880, 2011, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2011.06.003.
- [182] P. Povinec, I. Sýkora, A. Kováčik, L. Brest’áková, M. Gera i K. Holý, “Aerosol radioactivity record in Bratislava/Slovakia following the Fukushima accident – A comparison with global fallout and the Chernobyl accident”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 114, s. 81–88, 2012, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2012.05.008.
- [183] F. P. Carvalho, M. C. Reis, J. M. Oliveira, M. Malta i L. Silva, “Radioactivity from Fukushima nuclear accident detected in Lisbon, Portugal”, *Journal of Environmental Radioactivity*, t. 114, s. 152–156, 2012, ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2012.03.005.

Spis rysunków

1.1	Rozmieszczenie płyt tektonicznych wokół Japonii [1].	1
1.2	Położenie elektrowni jądrowej Fukushima Dai-ichi. Dane mapy ©2018, Google, ZENRIN. . . .	2
1.3	Elektrownia jądrowa Fukushima Dai-ichi [3].	3
1.4	Schemat budowy reaktora typu BWR MARK I [4].	3
1.5	Schemat przedstawiający FDNPP w trakcie nadejścia tsunami 11.03.2011 [4].	5
1.6	Oszacowane aktywności ^{137}Cs uwolnionego do atmosfery, na podstawie 20 opracowań zebranych w raporcie IAEA [5] - wykres zmodyfikowany.	8
1.7	Międzynarodowa skala zdarzeń jądrowych i radiologicznych - INES.	10
1.8	Rozkład mocy dawki wewnątrz strefy o promieniu 80 km wokół FDNPP, na wysokości 1 m nad poziomem ziemi na dzień 29 marca 2011 r. Badania MEXT i DOE [18]. . . .	12
1.9	Strefy ewakuacji wokół FDNPP w latach 2011, 2012 i 2017 [19].	13
1.10	Diagram fazowy wybranych aktynowców z wyróżnionymi odmianami alotropowymi plutonu [37].	18
1.11	Diagram zależności potencjału redox od pH dla Pu w wodzie w obecności jonów wodorotlenkowych, węglanowych oraz fluorkowych [38].	19
1.12	Fragment łańcucha izotopów powstających w wypalonym paliwie uranowym w wyniku wychwytu neutronów i rozpadów promieniotwórczych[45].	21
1.13	Miejsca testów i ataków z użyciem broni jądrowej na świecie [51], [52].	24
1.14	Zestawienie testów i ataków z użyciem broni jądrowej w czasie [53].	25
1.15	Depozycja ^{137}Cs oraz $^{(239+240)}\text{Pu}$ na powierzchni kuli ziemskiej w następstwie testów broni jądrowej w funkcji czasu [58].	26
1.16	Średnia akumulowana depozycja (a) ^{137}Cs (na podstawie [59]), (b) $^{(239+240)}\text{Pu}$ [44] na powierzchni kuli ziemskiej w funkcji szerokości geograficznej po testach broni jądrowej. 26	26
1.17	Średnia akumulowana depozycja ^{238}Pu na powierzchni kuli ziemskiej w funkcji szerokości geograficznej po wypadku z udziałem satelity SNAP 9A, na rok 1973 (na podstawie [65]).	28
1.18	Układ prądów morskich na północnym Pacyfiku i usytuowanie miejsca PPG [83]. . . .	31
1.19	Zależność stosunków aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych. Wartości stosunków aktywności przeliczone na 2011 r.	32
1.20	Zależność stosunków aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych. Wartości stosunków aktywności przeliczone na 2011 r.	33
1.21	Zależność czasu połowicznego zaniku od energii cząstek alfa emitowanych podczas rozpadu [87].	34
1.22	Schemat blokowy czterokomorowego spektrometru promieniowania alfa [44].	35
1.23	Zależność zasięgu cząstek alfa w krzemie od energii E tych cząstek [85].	36

1.24	Widmo Pu próbki całkowitego opadu atmosferycznego (maj 2007 r.) [43].	36
1.25	Trajektoria ruchu cząstek alfa w komorze spektrometru promieniowania alfa.	37
1.26	Schemat ideowy spektrometru promieniowania gamma [44].	38
1.27	Zależność wydajności względnej detektorów germanowych od energii promieniowania gamma [89].	38
1.28	Widma promieniowania tła detektora HPGe typu p o wydajności 35% 1. bez osłony, 2. z osłoną 2 cm Cu, 3. z osłoną 10 cm Pb niepolerowanego, 4. z osłoną 10 cm Pb polerowanego, 5. z osłoną 10 cm Pb + 2 cm Cu [93].	40
1.29	Krzywa efektywności detektora HPGe typu n o objętości czynnej 113 cm ³ [94].	41
1.30	Oddziaływanie promieniowania gamma z kryształem detektora a. schemat oddziaływań b. przykład struktury widma promieniowania gamma ²⁸ Al [89].	41
1.31	Usytuowanie pacjenta względem detektorów w spektrometrach całego ciała a) pozycja stojąca [96], b) pozycja siedząca [97], c) pozycja półleżąca [98], d) leżąca [96].	43
1.32	Wnętrze komory spektrometru całego ciała w Laboratorium Pomiarów Dozymetrycznych NCBJ w Świerku (autor zdjęcia: J. Ośko).	44
2.1	Lokalizacja miejsc poboru próbek podczas ekspedycji do prefektury Fukushima a) w marcu 2011 r., b) w kwietniu 2011 r., c) w listopadzie 2011 r. oraz d) w czerwcu 2015 r.	48
2.2	Wybrane miejsca poboru próbek materiału naniesionego w czerwcu 2015 r. a) Muroharabashi - próbka FUK5 b) Tsushima Bridge - próbka FUK9.	50
2.3	Krzywe wydajności dla koaksjalnego detektora HPGe typu p o wydajności względnej 100% dla geometrii G5, G10, G20, G30 i G50	52
2.4	Widmo próbki FUK9, czas pomiaru 3 596 s, spektrometr promieniowania gamma z koaksjalnym detektorem HPGe typu p (ORTEC, GEM 100210) o względnej wydajności 100 % i FWHM 2.1 keV dla linii 1332 keV	53
2.5	Badany materiał środowiskowy po spopieleniu w piecu muflowym w temperaturze 600 °C przez 18 h.	54
2.6	Schemat etapu procedury sekwencyjnej z wydzielaniem Pu z materiału próbek środowiskowych wykorzystanej w badaniach w QST.	56
2.7	System próżniowy używany do separacji pierwiastkowej w trakcie badań w QST.	57
2.8	Komora spektrometru promieniowania alfa (Alpha Ensemble, ORTEC) z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm ² oraz z widocznym źródłem alfa - spektrometrycznym (QST).	58
2.9	Widmo frakcji Pu próbki FUK9, czas pomiaru 872942 s, spektrometr promieniowania alfa Alpha Ensemble, ORTEC z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm ²	58
2.10	Schemat etapu procedury sekwencyjnej z wydzielania U z materiału próbek środowiskowych wykorzystanej w badaniach w QST.	61
2.11	Widmo frakcji U próbki FUK9, czas pomiaru 603 816 s, spektrometr promieniowania alfa Alpha Ensemble, ORTEC z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm ²	62
2.12	Schemat etapu procedury sekwencyjnej z wydzielania Am, Cm z materiału próbek środowiskowych wykorzystanej w badaniach w QST.	64
2.13	Widmo frakcji Pu próbki FUK9, czas pomiaru 1120162 s, spektrometr promieniowania alfa Alpha Ensemble, ORTEC z detektorem typu PIPS o powierzchni aktywnej 450 mm ²	66

2.14	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 1 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 3SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2+GF oraz B1+B3+GF.	76
2.15	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 2 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 3SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2+GF oraz B2+B3+GF.	77
2.16	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 3 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 3SM w dwóch konfiguracjach: B1+B3+GF oraz B2+B3+GF.	78
2.17	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 1 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2 oraz B1+B3.	80
2.18	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 2 FDNPP i oszacowanej na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2 oraz B2+B3.	81
2.19	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz frakcji pochodzącej z bloku nr. 2 FDNPP i oszacowanej na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+B2 oraz B2+B3.	82
2.20	Schemat tworzenia par liczb będących odpowiednimi elementami macierzy a w przypadku stosowania przedziałów zmienności stosunków aktywności wybranych izotopów charakteryzujących dane źródła izotopowe do 2SM.	84
2.21	Prawdopodobieństwo wystąpienia danej kombinacji źródeł (B1 i B2, B1 i B3 lub B2 i B3 FDNPP) w próbkach materiału naniesionego [105].	86
2.22	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz uśrednione frakcje pochodzące z bloku nr. 1 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+ B2 oraz B1+ B3 przy założeniu, że stosunki aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujące dane źródło izotopowe zmieniają się w przyjętym zakresie.	87
2.23	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz uśrednione frakcje pochodzące z bloku nr. 2 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+ B2 oraz B2 +B3 przy założeniu, że stosunki aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujące dane źródło izotopowe zmieniają się w przyjętym zakresie.	88
2.24	Stężenie aktywności ^{238}Pu w próbkach (dane eksperymentalne) [105] oraz uśrednione frakcje pochodzące z bloku nr. 3 FDNPP oszacowane na podstawie modelu 2SM w dwóch konfiguracjach: B1+ B2 oraz B2 +B3 przy założeniu, że stosunki aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujące dane źródło izotopowe zmieniają się w przyjętym zakresie.	89
2.25	SCC w IFJ PAN	91
2.26	Wnętrze SCC w IFJ PAN.	91
2.27	Przekrój SCC w IFJ PAN [119]	92
2.28	Fantom RS-232 użyty do kalibracji SCC wypożyczony z CLOR.	93
2.29	Schemat SCC wraz z fantomem tarczycy w położeniu (0,0,0) [125].	95
2.30	Rozkład względnej różnicy w wydajności rejestracji kwantów o energii 364.5 keV a) w płaszczyźnie (x,z) b) w płaszczyźnie (x,y) dla detektora X w zakresach (-5,5) cm dla osi x, (-2,2) cm dla osi y oraz z [125].	96

2.31	Rozkład względnej różnicy w wydajności rejestracji kwantów o energii 364.5 keV a) w płaszczyźnie (x,z) b) w płaszczyźnie (x,y) dla detektora Y w zakresach (-5,5) cm dla osi x, (-2,2) cm dla osi y oraz z [125].	97
2.32	Schemat rozmieszczenia kanałów do wprowadzania źródeł promieniotwórczych w elementach konstrukcyjnych (dużych i małych) fantomu POLA [126].	98
2.33	Budowa źródła promieniotwórczego fantomu POLA 1. pusta rurka PVC 2. rurka PVC z zaaplikowanym roztworem izotopów promieniotwórczych 3. źródło promieniotwórcze fantomu POLA [126].	99
2.34	Źródła promieniotwórcze fantomu POLA [126].	99
2.35	Fantom POLA ułożony na łóżku SCC dla sylwetki POLA PACJENT 55 (widok z góry) oraz schemat ułożenia większych (kolor stalowy) i mniejszych elementów (kolor szary) dla wskazanego wariantu fantomu [126].	100
2.36	Krzywa wydajności dla detektora X w SCC dla geometrii pomiarowej POLA PACJENT 55 [126].	101
2.37	Funkcje zależności wydajności rejestracji linii widmowych o energiach 604.7 keV, 795.9 keV (¹³⁴ Cs), 661.7 (¹³⁷ Cs), 1460.8 keV (⁴⁰ K) detektora X SCC od masy oraz od BMI wybranych geometrii pomiarowych (wariantów fantomu POLA).	102
2.38	Widmo pacjenta P6, czas pomiaru 3842 s, detektor X SCC - koaksjalny HPGe typu PopTop (ORTEC, GMX 30190) o względnej wydajności 30 %.	105
2.39	Róże wiatru dla stacji a) Kraków - Balice oraz b) Kraków - Czyżyny z podziałem na półrocza chłodne (X - III) i ciepłe (IV - IX) opracowane na podstawie danych pomiarowych z lat 2001 - 2005 [134].	108
2.40	Stacja MASS-500 w IFJ PAN : a) widok ogólny (autor zdjęcia: J.W. Mietelski), b) nowy filtr powietrza założony w stacji MASS-500 i włączone promienniki podczerwieni, c) filtr powietrza po 7-dniowym czasie ekspozycji, d) zestaw dwóch kaset na węgiel aktywny.	109
2.41	Kolektor całkowitego opadu atmosferycznego w IFJ PAN: a) widok ogólny, b) stalowa rynna kolektora, c) beczka służąca do gromadzenia opadu atmosferycznego połączona z rynną kolektora.	110
2.42	Widmo próbki frakcji gazowej powietrza MA11132, czas pomiaru 78720 s, detektor koaksjalny HPGe (Silena SpA) o względnej wydajności 11 %.	113
2.43	Widmo próbki frakcji aerozolowej powietrza M11132, czas pomiaru 60420 s, detektor planarny HPGe.	116
2.44	Widmo próbki całkowitego opadu atmosferycznego SDS04B11, czas pomiaru 102 180 s, detektor koaksjalny HPGe (Silena SpA) o względnej wydajności 11 %.	118
3.1	Widmo całkowitego opadu atmosferycznego zdeponowanego na kurtce osoby ekspozowanej na deszcz w Tōkiō w marcu 2011 r., data pomiaru 5.04.2011, czas pomiaru 70 502 s, detektor X SCC - koaksjalny HPGe typu PopTop (ORTEC, GMX 30190) o względnej wydajności 30 % [138].	124
3.2	Wyniki symulacji trajektorii mas powietrza między 13.03.2011 a 26.03.2011, mających swój początek nad obszarem FDNPP i uzyskane przy użyciu modelu dyspersji Langrange'a [6].	125
3.3	Lokalizacja rejonów Japonii, na których nastąpiła depozycja izotopów promieniotwórczych z FDNPP wraz z rozkładem depozycji ¹³⁷ Cs na dzień 13.10.2011[13].	126
3.4	Rozkład stężenia aktywności ¹³⁷ Cs w próbkach gleby pobranych z obszaru prefektury Fukushima w funkcji odległości od FDNPP.	128

3.5	Rozkład stężenia aktywności ^{137}Cs w próbkach gleby pobranych z obszaru prefektury Fukushima w funkcji odległości od FDNPP (na podstawie [105]).	128
3.6	Stężenie ^{137}Cs w powierzchniowej warstwie gleby (do głębokości 5 cm) na terenie Japonii w latach 1974 - 2018 [142].	130
3.7	Stężenie aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ oraz stosunek aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach gleby pobranych z terenu przy reaktorze nr. 1 FDNPP w odległości 500m w kierunku zachód północny zachód od niego. [151]	135
3.8	Zależność stężenia aktywności ^{238}Pu od $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima.	135
3.9	Zależność stężenia aktywności ^{238}Pu frakcji związanej z FDNPP od stosunku aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla próbek pobranych z obszaru prefektury Fukushima.	137
3.10	Zależność stosunku aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od odległości od FDNPP na terenie prefektury Fukushima.	138
3.11	Rozkład przestrzenny stosunku aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ na terenie prefektury Fukushima.	138
3.12	Rozkład przestrzenny stosunku aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ na terenie prefektury Fukushima.	139
3.13	Schemat scenariusza uwolnień i depozycji Pu z FDNPP w środowisku lądowym prefektury Fukushima.	140
3.14	Zależność stężeń aktywności ^{137}Cs i ^{238}Pu w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima	141
3.15	Zależność stężeń aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima.	141
3.16	Zależność stosunków aktywności ^{137}Cs i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych (tab. 1.14 i 1.3) z uwzględnieniem wyników badań własnych dla próbek pochodzących z obszaru prefektury Fukushima.	142
3.17	Stężenia aktywności ^{241}Am oraz stosunki aktywności ^{241}Am i $^{239+240}\text{Pu}$ dla próbek gleby pobranych na terenie FDNPP, 500 m od bloku nr. 1 w kierunku zachodnim północno - zachodnim oraz południowym południowo - zachodnim, na podstawie raportów TEPCO [153].	144
3.18	Zmiana stosunku aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w czasie, dla śladów pochodzących z eksplozji bomby jądrowej w Nagasaki, śladów związanych z GF oraz awarią na terenie prefektury Fukushima (na podstawie danych zawartych w tab. 1.14 oraz tab. 1.3).	145
3.19	Zależność stężeń aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach pobranych na terenie prefektury Fukushima.	145
3.20	Zależność stosunków aktywności ^{241}Am i $^{(239+240)}\text{Pu}$ od ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopowych (tab. 1.14 i 1.3) z uwzględnieniem wyników badań własnych dla próbek pochodzących z obszaru prefektury Fukushima.	147
3.21	Stosunki aktywności ^{244}Cm i $^{(239+240)}\text{Pu}$, ^{244}Cm i ^{238}Pu oraz ^{244}Cm i ^{241}Am dla próbek gleby pobranych na terenie FDNPP 500 m od bloku nr. 1 w kierunku zachodnim północno - zachodnim oraz południowym południowo - zachodnim na podstawie raportów TEPCO [153].	149
3.22	Stosunki aktywności (średnia \pm SD) ^{244}Cm i $^{(239+240)}\text{Pu}$, ^{244}Cm i ^{238}Pu , ^{244}Cm i ^{241}Am oraz ^{244}Cm i ^{137}Cs na podstawie a) [153] b) [105] c) badań własnych.	150

3.23	Stosunki aktywności ^{238}U i ^{234}U oraz ^{235}U i ^{238}U dla próbek gleby pobranych na terenie FDNPP 500 m od bloku nr. 1 w kierunku zachodnim północno - zachodnim oraz południowym południowo - zachodnim na podstawie raportów TEPCO [153].	151
3.24	Położenie miejscowości w okolicach, których pobierano materiał naniesiony na terenie prefektury Fukushima w latach 2012 - 2013.	153
3.25	Zestawienie procentowych udziałów konkurencyjnych 3 - elementowych kombinacji źródeł izotopowych w zbiorze wyników stężeń aktywności ^{238}Pu opublikowanych przez Yamamoto et al. (2014) [105] dla próbek materiału naniesionego. Procentowe udziały oszacowano na podstawie wyników z 3SM (rozdz. 2.2.2).	155
3.26	Zestawienie procentowych udziałów konkurencyjnych 3 - elementowych kombinacji źródeł izotopowych w zbiorze wyników stężeń aktywności ^{238}Pu opublikowanych przez Yamamoto et al. (2014) [105] dla próbek materiału naniesionego. Procentowe udziały oszacowano na podstawie wyników z 2SM (rozdz. 2.2.2).	157
3.27	Stężenia aktywności izotopów ^{131}I oraz ^{134}Cs i ^{137}Cs w powietrzu oszacowanych na podstawie pomiarów wykonanych na terenie FDNPP, Tōkai, Tsukuba, Tōkiō i Chiba [13].	160
3.28	Położenie miejsc pobytu pacjentów na terenie Japonii względem FDNPP poddanych pomiarom w SCC.	161
3.29	Przebieg wybranych trajektorii mas powietrza mających początek 12.03.2011 r. o godz. 9:00 UTC nad FDNPP oraz pionowy profil wysokości w/w trajektorii. Model: HYSPLIT [167], czas obserwacji trajektorii: 315 godzin, użyte dane meteorologiczne: GDAS.	165
3.30	Rozkład częstości występowania trajektorii mas powietrza przechodzących nad Krakowem na wysokości 500 m nad powierzchnią ziemi (wysokość związana z niepewnością użytego modelu) między 20.03.2011 a 24.03.2011 (model trajektorii wstecznych). Model: HYSPLIT [167], interwał pomiędzy kolejnymi trajektoriami: 3 godziny, czas obserwacji każdej trajektorii: 48 godzin, rozdzielczość użytej siatki: $1^0 \times 1^0$, użyte dane meteorologiczne: GDAS.	166
3.31	Przebieg wybranych trajektorii mas powietrza mających początek 20.03.2011 r. o godz. 15:00 UTC nad FDNPP oraz pionowy profil wysokości w/w trajektorii. Model: HYSPLIT [167], czas obserwacji trajektorii: 315 godzin, użyte dane meteorologiczne: GDAS.	167
3.32	Przebieg wybranych trajektorii mas powietrza mających początek 29.03.2011 r. o godz. 22:00 UTC nad FDNPP oraz pionowy profil wysokości w/w trajektorii. Model: HYSPLIT [167], czas obserwacji trajektorii: 315 godzin, użyte dane meteorologiczne: GDAS.	168
3.33	Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji gazowej (gaz), aerozolowej (aer) i sumie obydwu frakcji (tot) oraz stosunek aktywności ^{131}I we frakcji gazowej do ^{131}I w sumie frakcji gazowej i aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011.	169
3.34	Zmiana stosunku aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej (aer) do ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011.	169
3.35	Zmiana stosunku aktywności ^{131}I w sumie frakcji gazowej i aerozolowej (tot) do ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011.	170
3.36	Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w Europie pomiędzy 20.03.2011 a 13.04.2011 [141].	173

3.37	Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w USA pomiędzy 12.03.2011 a 16.04.2011 [169].	175
3.38	Stężenia aktywności ^{131}I we frakcji aerozolowej w przygruntowej warstwie powietrza w Kanadzie pomiędzy 15.03.2011 a 3.05.2011 [169].	175

Spis tablic

1.1	Wybrane dane i parametry bloków energetycznych elektrowni Fukushima Dai-ichi [1], [5] . . .	4
1.2	Zestawienie wybranych zdarzeń mających miejsce podczas awarii FDNPP w blokach nr. 1,2 i 3 [1], [5], [8].	6
1.3	Zestawienie aktywności wybranych izotopów ze składu paliwa jądrowego FDNPP w blokach nr. 1,2 i 3 w dniu 2011.03.11 oraz aktywności tych izotopów uwolnionych do atmosfery [1], [6], [10].	9
1.4	Zestawienie aktywności wybranych izotopów ze składu paliwa jądrowego FDNPP w blokach nr. 1,2 i 3 uwolnionych do wody chłodzącej oraz Pacyfiku[6], [10]	9
1.5	Zestawienie wybranych właściwości jodu [7].	14
1.6	Zestawienie wybranych izotopów jodu, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.	15
1.7	Zestawienie wybranych właściwości cezu [7].	15
1.8	Zestawienie wybranych izotopów cezu, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.	16
1.9	Zestawienie wybranych właściwości plutonu [7], [35].	18
1.10	Zestawienie wybranych izotopów plutonu, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.	20
1.11	Zestawienie wybranych właściwości ameryku [7], [14].	22
1.12	Zestawienie wybranych izotopów ameryku, typu ich rozpadu oraz energii emitowanego promieniowania ©IAEA Nuclear Data Section.	22
1.13	Zestawienie aktywności i mas wybranych izotopów uwolnionych do atmosfery w czasie awarii w Czarnobylu [70].	30
1.14	Zestawienie stosunków aktywności $^{238}\text{Pu}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$, $^{137}\text{Cs}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$ oraz $^{241}\text{Am}/(^{239}+^{240})\text{Pu}$ dla wybranych antropogenicznych źródeł izotopów promieniotwórczych w środowisku. . . .	30
2.1	Szczegóły dotyczące miejsc poboru oraz rodzaju próbek pobranych w czasie czterech ekspedycji na teren prefektury Fukushima w latach 2011 - 2015	49
2.2	Skład izotopowy źródeł gamma - promieniotwórczych (kalibracyjnych) certyfikowanych przez National Calibration Institute of Japan (NMIJ, JCSS 0061).	51
2.3	Stężenia aktywności ^{238}Pu oraz $^{239+240}\text{Pu}$ w materiałach referencyjnych: IAEA 375 oraz NIST 4350B i NIST 4354.	60
2.4	Zestawienie wybranych izotopów uranu i danych dotyczących ich rozpadów alfa ©IAEA Nuclear Data Section.	62
2.5	Stosunki aktywności $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ oraz $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ w materiałach referencyjnych: IAEA 375 oraz NIST 4350B i NIST 4354.	63
2.6	Stężenia aktywności ^{241}Am w materiałach referencyjnych: IAEA 375, NIST 4350B i NIST 4354.	65

2.7	Zestawienie wybranych izotopów uranu i danych dotyczących ich rozpadów alfa ©IAEA Nuclear Data Section.	66
2.8	Wyniki analiz próbek pobranych na terenie prefektury Fukushima pomiędzy 2011 r. a 2015 r. tj: zawartość materii organicznej [%], stężenia aktywności: ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am [Bq kg^{-1}] oraz stosunki aktywności $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ i $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (dane skorygowane na datę 11.03.2011). . .	68
2.9	Wyniki udziału procentowego oraz aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{238}Pu przynależnych FDNPP w analizowanych próbkach (tab.2.8) oszacowane przy zastosowaniu 2SM.	71
2.10	Zestawienie możliwych kombinacji 4, 3 i 2 źródeł izotopów promieniotwórczych w środowisku prefektury Fukushima ze zbioru 4-ro elementowego.	72
2.11	Zestawienie przyjętych stosunków aktywności izotopów: ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{242}Cm i $^{243+244}\text{Cm}$ dla wybranych źródeł (na podstawie tab.1.14 i 1.3).	72
2.12	Porządek rozważanych izotopów w modelu 4SM.	73
2.13	Porządek rozważanych źródeł promieniotwórczych w modelu 4SM.	73
2.14	Porządek rozważanych źródeł promieniotwórczych w modelu 3SM.	74
2.15	Porządek rozważanych izotopów promieniotwórczych w modelu 3SM.	74
2.16	Zestawienie podstawowych danych statystycznych opisujących zbiory uzyskanych rozwiązań za pomocą 3 wariantów 3SM (procentowy udział frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami [%]) dla zestawów wyników próbek materiału naniesionego	75
2.17	Porządek rozważanych izotopów promieniotwórczych w modelu 2SM.	79
2.18	Porządek rozważanych źródeł promieniotwórczych w modelu 2SM.	79
2.19	Zestawienie podstawowych danych statystycznych opisujących zbiory uzyskanych rozwiązań za pomocą 3 wariantów 2SM (procentowy udział frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami [%]) dla zestawów wyników próbek materiału naniesionego.	83
2.20	Zestawienie wybranych wartości stosunków aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu z przyjętych zakresów tej wielkości (od -5% do 5% wartości średniej) dla bloków nr. 1, 2 i 3 FDNPP.	84
2.21	Zestawienie podstawowych danych statystycznych opisujących zbiory uzyskanych rozwiązań za pomocą 3 wariantów 2SM (średni procentowy udział frakcji ^{238}Pu związanych z wybranymi źródłami [%]) dla zestawów wyników próbek materiału naniesionego oraz prawdopodobieństwo (P) wystąpienia danego wariantu kombinacji źródeł izotopowych w zadanych zakresach zmienności stosunków aktywności ^{242}Cm i ^{238}Pu charakteryzujących 3 bloki FDNPP [%]. . .	85
2.22	Zestawienie podstawowych danych osób poddanych pomiarom w SCC.	92
2.23	Zestawienie wydajności detektora X i Y SCC dla linii widmowej ^{131}I o energii 364 keV dla geometrii tarczycy.	94
2.24	Wymiary elementów konstrukcyjnych fantomu POLA [126].	98
2.25	Stężenia aktywności i wybrane dane dotyczące izotopów promieniotwórczych (w tym energie emitowanych kwantów gamma) w roztworze wypełniającym źródła promieniotwórcze fantomu POLA [126].	99
2.26	Zestawienie wybranych danych dotyczących użytych do kalibracji SCC wariantów fantomu POLA (geometrii pomiarowych).	101
2.27	Zestawienie wydajności rejestracji kwantów gamma o wybranych energiach dla geometrii pomiarowych całego ciała odpowiadających masom i BMI osób poddanych pomiarom, dla detektora X SCC.	104
2.28	Wyniki aktywności ^{131}I oszacowane dla osób poddanych pomiarom w SCC przebywających w 2011 r. w Japonii (geometria tarczycy, detektory X i Y).	106

2.29	Wyniki aktywności izotopów Cs oraz ^{40}K oszacowane na podstawie dedykowanych kalibracji SCC wg. modeli ze zmienną masą i BMI dla osób poddanych pomiarom w SCC (det. X) wchodzącym w skład dwóch grup 1. osób przebywających w Japonii w 2011 r. 2. mieszkańców Krakowa.	107
2.30	Zestawienie podstawowych informacji dotyczących próbek gazowej i aerozolowej frakcji przygruntowej warstwy powietrza w Krakowie pobranych w okresie od 14.03.2011 do 26.04.2011.	112
2.31	Stężenia aktywności ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ oraz ^{241}Am materiale referencyjnym IAEA 375 [138].	117
2.32	Zestawienie podstawowych informacji dotyczących próbek całkowitego opadu atmosferycznego pobranych w Krakowie w okresie od 11.03.2011 do 31.10.2011.	117
2.33	Wyniki analiz frakcji gazowej i aerozolowej przygruntowej warstwy powietrza w Krakowie pobranych pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011 tj.: stężenia aktywności ^{131}I (frakcji gazowej i aerozolowej), ^{137}Cs , ^{136}Cs , ^{134}Cs , $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$, ^7Be [138].	120
2.34	Wyniki analiz frakcji gazowej i aerozolowej przygruntowej warstwy powietrza w Krakowie pobranych pomiędzy 21.03.2011 a 26.04.2011 tj.: stężenia aktywności ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{242}Cm [138].	121
2.35	Wyniki analiz całkowitego opadu atmosferycznego w Krakowie pobranego pomiędzy 11.03.2011 do 31.10.2011 tj.: stężenia aktywności ^{131}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^7Be i ^{22}Na	121
3.1	Zestawienie wyników stosunków aktywności ^{238}Pu i $^{(239+240)}\text{Pu}$ w próbkach gleby, ściółki leśnej i materiału naniesionego pobranych na obszarze prefektury Fukushima.	133
3.2	Obciążające dawki skuteczne pochodzące od ^{131}I , ^{134}Cs i ^{137}Cs oszacowane na podstawie pomiarów pacjentów w SCC.	163
4.1	Zestawienie zadań wykonanych w ramach badań wchodzących w zakres rozdziału 2.1 wraz z przypisaniem ich wykonawcy i uwzględnieniem miejsca ich wykonania.	210
4.2	Zestawienie zadań wykonanych w ramach badań wchodzących w zakres rozdziału 2.3 wraz z przypisaniem ich wykonawcy i uwzględnieniem miejsca ich wykonania.	211
4.3	Zestawienie zadań wykonanych w ramach badań wchodzących w zakres rozdziału 2.4 wraz z przypisaniem ich wykonawcy i uwzględnieniem miejsca ich wykonania.	212

Dodatki

A. Dane dotyczące wykonawcy i miejsca wykonania poszczególnych zadań wchodzących w zakres badań własnych

a) Badania wchodzące w zakres rozdziału 2.1 (tab. 4.1) zostały wykonane w ramach:

- działalności statutowej oraz grantu Fukushima Project Headquarters QST w Chiba,
- Grant-in-Aid for Scientific Research JSPS nr. 15F14801 (grant własny autora, Japonia).

Tablica 4.1: Zestawienie zadań wykonanych w ramach badań wchodzących w zakres rozdziału 2.1 wraz z przypisaniem ich wykonawcy i uwzględnieniem miejsca ich wykonania.

Lp.	Zadania	Wykonawca ¹	Miejsce wykonania zadania ²
1	Pobranie próbek - marzec 2011 - kwiecień 2011 - listopad 2011 - czerwiec 2015	FPH QST FPH QST FPH QST NK, SS, RK	pref. Fukushima pref. Fukushima pref. Fukushima pref. Fukushima
2	Przygotowanie próbek do pomiarów gamma - spektrometrycznych	RK	QST
3	Pomiary gamma - spektrometryczne (kalibracja spektrometru, pomiary próbek)	RK	QST
4	Przygotowanie próbek do pomiarów alfa - spektrometrycznych	RK	QST
5	Separacja pierwiastków (metody radiochemiczne)	RK	QST
6	Pomiary alfa - spektrometryczne (kalibracja spektrometru, walidacja metody, pomiary próbek)	RK	QST
7	Opracowanie wyników analiz alfa - i gamma - spektrometrycznych	RK	QST

¹ FPH QST - archiwalne próbki z zasobów Fukushima Project Headquarters National Institutes for Quantum and Radiological Sciences and Technology ; NK - N. Kavasi (QST), SS - S.K. Sahoo (QST), RK - autor (QST/IFJ PAN); ² pref. Fukushima - prefektura Fukushima

b) Badania wchodzące w zakres rozdziału 2.3 (tab. 4.2) zostały wykonane w ramach:

- działalności statutowej Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN,
- pracy magisterskiej mgr. inż. Magdaleny Grochowskiej (AGH) pt.: „Kalibracja Spektrometru Całego Ciała za pomocą fantomu o zmiennej geometrii” (obrona wrzesień 2013 r., promotor - autor) ¹,
- strategicznego projektu badawczego NCBR „Technologie wspomagające rozwój bezpiecznej energetyki jądrowej” tj. zadania badawczego nr. 6 „Rozwój metod zapewnienia bezpieczeństwa jądrowego i ochrony radiologicznej dla bieżących i przyszłych potrzeb energetyki jądrowej” (2011-2014)

Tablica 4.2: Zestawienie zadań wykonanych w ramach badań wchodzących w zakres rozdziału 2.3 wraz z przypisaniem ich wykonawcy i uwzględnieniem miejsca ich wykonania.

Lp.	Zadanie	Wykonawca ¹	Miejsce wykonania zadania
1	Przygotowanie i pomiary fantomu tarczycy w SCC (kalibracja, badanie niepewności pomiarów związanych ze zmianą położenia fantomu względem detektorów)	MG, PJ, RK	IFJ PAN
2	Wykonanie dodatkowego fantomu tarczycy	PJ	
3	Opracowanie wyników kalibracji SCC dla geometrii tarczycy	MG, PJ, RK	
4	Konstrukcja fantomu o zmiennej geometrii („POLA”)	MG, PJ, RK ²	
5	Pomiary kalibracyjne fantomów całego ciała o różnej geometrii	MG, PJ ²	
6	Opracowanie wyników kalibracji SCC w różnych geometriach całego ciała	MG ²	
7	Przygotowanie krzywych wydajności SCC dla linii widmowych ¹³⁴ Cs o energii 604 keV i 798 keV, ¹³⁷ Cs o energii 662 keV oraz ⁴⁰ K 1461 keV dla różnych geometrii	RK	
8	Pomiary pacjentów w SCC	PJ, RK	
9	Opracowanie wyników analiz dla osób poddanych pomiarom w SCC dla geometrii tarczycy	RK	
10	Opracowanie wyników analiz dla osób poddanych pomiarom w SCC dla geometrii całego ciała	RK	

¹ MG - M. Grochowska (AGH), PJ - Paweł Janowski (IFJ PAN), RK - autor (IFJ PAN); ² prace wchodzące w zakres pracy magisterskiej pt.: „Kalibracja Spektrometru Całego Ciała za pomocą fantomu o zmiennej geometrii”

¹Praca otrzymała III nagrodę w konkursie Polskiego Towarzystwa Nukleonowego na najlepszą pracę z atomistyki w roku akademickim 2013/2014

c) Badania wchodzące w zakres rozdziału 2.4 (tab. 4.3) zostały wykonane w ramach:

- działalności statutowej Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN,
- strategicznego projektu badawczego NCBR „Technologie wspomagające rozwój bezpiecznej energetyki jądrowej” tj. zadania badawczego nr. 6 „Rozwój metod zapewnienia bezpieczeństwa jądrowego i ochrony radiologicznej dla bieżących i przyszłych potrzeb energetyki jądrowej” (2011-2014)

Tablica 4.3: Zestawienie zadań wykonanych w ramach badań wchodzących w zakres rozdziału 2.4 wraz z przypisaniem ich wykonawcy i uwzględnieniem miejsca ich wykonania.

Lp.	Zadanie	Wykonawca ¹	Miejsce wykonania zadania
Fracja gazowa powietrza			
1	Przygotowanie węgla aktywnego, montaż filtrów węglowych w stacji MASS-500	KB, RK	IFJ PAN
2	Pomiary gamma - spektrometryczne	KB, PJ, RK	
3	Kalibracja wydajnościowa spektrometrów promieniowania gamma	RK	
4	Oszacowanie limitu detekcji dla metody badawczej ¹³¹ I we frakcji gazowej powietrza	RK	
5	Opracowanie wyników analiz gamma - spektrometrycznych	RK	
Fracja aerozolowa powietrza			
6	Instalacja filtrów powietrza w stacji MASS-500	KB, RK	IFJ PAN
7	Pomiary gamma - spektrometryczne	KB, PJ, RK	
8	Kalibracja wydajnościowa spektrometrów promieniowania gamma	KB, RK	
9	Opracowanie wyników analiz gamma - spektrometrycznych	KB, RK	
10	Przygotowanie próbek do analiz radiochemicznych	RK	
11	Analizy radiochemiczne (separacje pierwiastków)	JWM, ET	
12	Pomiary alfa - spektrometryczne	JWM, ET	
13	Opracowanie wyników analiz alfa - spektrometrycznych	JWM, ET	
Całkowity opad atmosferyczny			
14	Pobór próbek opadu atmosferycznego	ET	IFJ PAN
15	Przygotowanie próbek do pomiarów gamma - spektrometrycznych	JWM, ET	
16	Pomiary gamma - spektrometryczne	JWM	
17	Kalibracja wydajnościowa spektrometrów promieniowania gamma	JWM, RK	
18	Opracowanie wyników analiz gamma - spektrometrycznych	RK	

¹ KB - K. Brudecki, PJ - Paweł Janowski, JWM - J.W. Mietelski, ET - E. Tomankiewicz, RK - autor, wszyscy wykonawcy z IFJ PAN

B. Sekwencyjna procedura wydzielenia Pu, Am i U z próbek środowiskowych

Poniższa procedura została przygotowana częściowo w oparciu o metodyki stosowane w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN [43], [44] a częściowo o dane literaturowe.

Materiałem podlegającym analizom były spopielone w piecu muflowym, w temperaturze 600 °C, próbki środowiskowe lub materiały referencyjne. Masa spopielonych próbek nie przekraczała 10 g.

1. etap - wydzielenie Pu

a) Mineralizacja

- spopielone próbki przenoszono do naczyń teflonowych przy użyciu ok. 10 ml 1 M HNO₃,
- dodawano znaczniki - ²⁴²Pu, ²⁴³Am
- dodawano 50 ml stężonego HF (rozpuszczenie krzemionki),
- mieszaninę gotowano ok. 4 godzin, a następnie odparowywano do pasty,
- dodawano 3 razy po 50 ml stężonego HNO₃ i za każdym razem mieszaninę odparowywano,
- dodawano 50 ml 20 % HCl, gotowano i po ustaniu procesu pienienia, dodatkowo 2 g H₃BO₃,
- po odparowaniu mieszaniny, dodawano 50 ml stężonego HNO₃,
- odparowywano rozpuszczoną próbkę do objętości ok. 10 ml,
- do ciepłego roztworu dodawano 90 ml H₂O i ogrzewano doprowadzając do wrzenia,
- po ostudzeniu, roztwór filtrowano przez filtr bibułowy (jakościowy) do szklanej zlewki.

b) Ustalenie Pu na +4 stopniu utlenienia

- w zlewce z próbką umieszczano mieszadło magnetyczne (teflonowe),
- w roztworze sprawdzano obecność Fe⁺³ w reakcji z rodankiem amonu,
- w przypadku wyniku negatywnego, dodawano ok. 0.5 ml FeCl₃ o stężeniu ok. 10 mg Fe⁺³ w 1 ml,
- roztwór doprowadzano do wrzenia, odstawiano na mieszadło magnetyczne (mieszanie) i do wciąż gorącego, ale niewrzącego dodawano 0.25 ml 98 % hydratu hydrazyny,
- po 15 - 20 minutach gotowania roztworu (rozkład hydrazyny, redukcja Fe⁺³ na Fe⁺², redukcja Pu⁺⁴⁺⁵⁺⁶ na Pu⁺³) dodawano 30 ml stężonego HNO₃ i ponownie gotowano,
- po ostudzeniu, do roztworu dodawano 3 g NaNO₂ (zmiana koloru roztworu na zielony) i gotowano aż do powrotnej zmiany koloru roztworu na żółty (utlenienie Pu⁺³ do Pu⁺⁴, stabilizacja Pu⁺⁴),
- roztwór studzono i przeprowadzano w 8 M HNO₃.

c) Separacja Pu

Przez kolumny, w tym kroku procedury, rozumieć należy rurki polietylenowe o średnicy 5 mm, zakończone porowatym teflonem (dysk filtracyjny) i wypełnione do wysokości ok. 49 mm anionitem DOWEX 1x8 200 - 400 mesh (WAKO), o objętości swobodnej 0.5 ml. Separacji dokonywano przy użyciu systemu próżniowego (the Vacuum Box System, EICHROM).

- przez kolumnę przepuszczano 10 ml 8 M HNO₃ (zmiana formy jonitu z chlorkowej na azotanową),
- na kolumnę wprowadzono próbkę (eluat stanowił frakcję zawierającą m.in. U, Am, Cm),
- przemywano kolumnę 50 ml 8 M HNO₃ (frakcja łączona z poprzednią),
- przez kolumnę przepuszczano 60 ml stężonego HCl (frakcja zawierająca głównie Th),
- Pu wypłukiwano z ostatnią frakcją, przepuszczając przez kolumnę 20 ml mieszaniny 0.1 M HF i 0.1 M HCl,

d) Źródło alfa - spektrometryczne (metoda współstrącania z NdF₃)

- do roztworu stanowiącego frakcję zawierającą Pu (ostatni punkt poprzedniego kroku procedury) dodawano 0.05 ml NdCl₃ zawierającego 50 μg Nd⁺³ oraz 5 ml stężonego HF,
- po ok. 1 godzinie, podczas której zachodziło pułapkowanie Pu w sieci narastających mikrokryształów NdF₃, roztwór filtrowano przez sączonego membranowy o średnicy porów 0.1 μm, przy użyciu pompki wodnej,
- po przesączeniu, zarówno naczynie, w którym znajdował się roztwór z Pu jak i lejek, przemywano niewielkimi ilościami alkoholu etylowego (kilka ml),
- tak przygotowany sączonego umieszczano (przyklejano) na podkładce ze stali nierdzewnej o tej samej średnicy co filtr (25 mm) i po wyschnięciu kierowano do pomiaru na spektrometrze promieniowania alfa.

2. etap - wydzielanie U

Materiałem wyjściowym w tym etapie, była frakcja z m.in. Am, U, Cm po oznaczeniach Pu (procedura „Separacja Pu”).

a) Usuwanie matrycy próbki

- frakcję próbki zawierającą m.in. Am, U, Cm odparowywano do objętości ok. 10 - 15 ml, a następnie dodawano 200 ml H₂O ,
- próbkę podgrzewano do rozpuszczenia osadu i do gorącego roztworu dodawano 0.1 g Ca⁺² oraz 10 g C₂H₂O₄,
- po ostudzeniu, za pomocą wody amoniakalnej ustalano pH 1.5 - 2.0 (strącenie szczawianów),
- próbkę dekantowano,

- osad (szczawiany) odwirowywano,
- osad rozpuszczano przy użyciu stężonego HNO_3 (ok. 10 ml),
- roztwór odparowywano, dodawano 30 ml H_2O i podgrzewano,
- do ciepłego roztworu dodawano 0.005 g Fe^{+3} ,
- roztwór podgrzewano,
- po ostudzeniu, dodawano wody amoniakalnej, do ustalenia pH 9 (wytrącenie $\text{Fe}(\text{OH})_3$),
- powstały osad odwirowywano i rozpuszczano w ok. 1 - 2 ml stężonego HNO_3 , a następnie przeprowadzano w 8 M HNO_3 ,

b) Separacja U

Przez kolumny, w tym kroku procedury, rozumieć należy rurki polietylenowe o średnicy 5 mm, zakończone porowatym teflonem (dysk filtracyjny) i wypełnione do wysokości ok. 49 mm żywicą UTEVA (EICHROM), o objętości swobodnej 0.7 ml. Separacji dokonywano przy użyciu systemu próżniowego (the Vacuum Box System, EICHROM).

- przez kolumnę przepuszczano 7 ml 8 M HNO_3 (zmiana formy jonitu z chlorkowej na azotanową),
- na kolumnę wprowadzono próbkę (eluat stanowił frakcję zawierającą m.in. Am, Cm),
- przemywano kolumnę 7 ml 8 M HNO_3 (frakcja łączona z poprzednią),
- przez kolumnę przepuszczano 42 ml 5 M HCl (frakcja zawierająca głównie Th),
- U wypłukiwano z ostatnią frakcją, przepuszczając przez kolumnę 28 ml 0.1 M HNO_3 .

c) Źródło alfa - spektrometryczne (metoda współstrącania z NdF_3)

- frakcję zawierającą U (ostatni punkt poprzedniego kroku procedury) odparowywano i przeprowadzano w 0.1 M HCl ,
- do roztworu dodawano 0.2 g $(\text{NH}_4)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2$ i mieszając doprowadzano do rozpuszczenia odczynnika (redukcja U^{+6} do U^{+4}),
- przygotowanie źródła przeprowadzano według takiej samej procedury jak w przypadku Pu (1 etap, punkt d).

3. etap - wydzielanie Am, Cm

Materiałem wyjściowym w tym etapie, była frakcja z m.in. Am, Cm po oznaczeniach U (procedura „Separacja U”).

a) Separacja Am, REE - usuwanie śladów Th

Przez kolumny, w tym kroku procedury, rozumieć należy rurki polietylenowe o średnicy 5 mm, zakończone porowatym teflonem (dysk filtracyjny) i wypełnione do wysokości ok. 25 mm żywicą TRU (EICHROM), o objętości swobodnej 0.35 ml. Separacji dokonywano przy użyciu systemu próżniowego (the Vacuum Box System, EICHROM).

- frakcję próbki zawierającą m.in. Am, Cm odparowywano i przeprowadzano w 8 M HCl (2 ml),
- przez kolumnę przepuszczano 7 ml 8 M HCl (uaktywnienie kolumny),
- na kolumnę wprowadzono próbkę (eluat stanowił frakcję zawierającą m.in. Am, Cm),
- przemywano kolumnę 12 ml 8 M HCl (frakcja łączona z poprzednią).

b) Separacja Am - usuwanie REE

Przez kolumny, w tym kroku procedury, rozumieć należy rurki polietylenowe o średnicy 5 mm, zakończone porowatym teflonem (dysk filtracyjny) i wypełnione do wysokości ok. 49 mm żywicą TEVA (EICHROM), o objętości swobodnej 0.7 ml. Separacji dokonywano przy użyciu systemu próżniowego (the Vacuum Box System, EICHROM).

- frakcję próbki zawierającą m.in. Am, Cm odparowywano i przeprowadzano w mieszaninę 2 M NH_4SCN + 0.1 M HCOOH (3 ml),
- przez kolumnę przepuszczano 7 ml 2 M NH_4SCN + 0.1 M HCOOH (uaktywnienie kolumny),
- na kolumnę wprowadzono próbkę (eluat stanowił frakcję zawierającą m.in. matrycę),
- przemywano kolumnę 7 ml 2 M NH_4SCN + 0.1 M HCOOH (frakcja łączona z poprzednią),
- przemywano kolumnę 7 ml 1 M NH_4SCN + 0.1 M HCOOH (frakcja zawierająca REE),
- Am, Cm wypłukiwano z ostatnią frakcją, przepuszczając przez kolumnę 5 ml 2 M HCl.

c) Źródło alfa - spektrometryczne (metoda współstrącania z NdF_3)

- frakcję zawierającą Am i Cm (ostatni punkt poprzedniego kroku procedury) odparowywano i przeprowadzano w 0.1 M HCl,
- przygotowanie źródła przeprowadzano według takiej samej procedury jak w przypadku Pu (1 etap, punkt d).

C. Sekwencyjna procedura wydzielenia Pu i Am z próbek aerozoli atmosferycznych (zdeponowanych na filtrach powietrza)

Poniższa procedura została przygotowana i opisana w pracy doktorskiej autora niniejszego opracowania [43], a bazowała na wcześniej opracowanych i stosowanych metodykach w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN [44].

Materiałem podlegającym analizom były spopielone w piecu muflowym, w temperaturze 600 °C, próbki filtrów powietrza ze zdeponowanymi na nich aerozolami atmosferycznymi. Masa spopielonych próbek nie była większa niż 10 g.

1. etap - wydzielenie Pu

a) Mineralizacja

- spopielone próbki przenoszono do naczyń teflonowych przy użyciu ok. 10 ml 1 M HNO₃,
- dodawano znaczniki - ²⁴²Pu, ²⁴³Am
- dodawano 70 ml stężonego HF (rozpuszczenie krzemionki),
- mieszaninę gotowano ok. 4 godzin, a następnie odparowywano do objętości ok. 10 ml,
- dodawano 20 ml stężonego HF i odparowywano do pasty,
- dodawano 3 razy po 50 ml stężonego HNO₃ i za każdym razem mieszaninę odparowywano,
- dodawano 70 ml stężonego HCl, gotowano i po ustaniu procesu pienienia, dodatkowo 3 g H₃BO₃,
- po odparowaniu mieszaniny, dodawano 50 ml stężonego HNO₃,
- odparowywano rozpuszczoną próbkę do objętości ok. 10 ml,
- do ciepłego roztworu dodawano 100 ml H₂O i ogrzewano doprowadzając do wrzenia,
- po ostudzeniu, roztwór filtrowano przez filtr bibułowy (jakościowy) do szklanej zlewki.

b) Ustalenie Pu na +4 stopniu utlenienia

- w zlewce z próbką umieszczano mieszadło magnetyczne (teflonowe),
- w roztworze sprawdzano obecność Fe⁺³ w reakcji z rodankiem amonu,
- w przypadku wyniku negatywnego, dodawano ok. 0.5 ml FeCl₃ o stężeniu ok. 10 mg Fe⁺³ w 1 ml,
- roztwór doprowadzano do wrzenia, odstawiano na mieszadło magnetyczne (mieszanie) i do wciąż gorącego, ale niewrzącego dodawano 1 ml hydratu hydrazyny (40 %),

- po 15 - 20 minutach gotowania roztworu (rozkład hydrazyny, redukcja Fe^{+3} na Fe^{+2} , redukcja Pu^{+4+5+6} na Pu^{+3}) dodawano 30 ml stężonego HNO_3 i ponownie gotowano,
- po ostudzeniu, do roztworu dodawano 5 g NaNO_2 (zmiana koloru roztworu na zielony) i gotowano aż do powrotnej zmiany koloru roztworu na żółty (utlenienie Pu^{+3} do Pu^{+4} , stabilizacja Pu^{+4}),
- roztwór studzono i przeprowadzano w 8 M HNO_3 .

c) Separacja Pu

Przez kolumny, w tym kroku procedury, rozumieć należy rurki polietylenowe o średnicy 4 mm, zakończone porowatym teflonem (dysk filtracyjny) i wypełnione do wysokości ok. 10 cm anionitem DOWEX 1x8. Separacji dokonywano przy użyciu autorskiego systemu ciśnieniowego używanego w IFJ PAN [44].

- przez kolumnę przepuszczano 50 ml 8 M HNO_3 (zmiana formy jonitu z chlorkowej na azotanową), a następnie przygotowaną próbkę (eluat stanowił frakcję zawierającą m.in. Am),
- przemywano kolumnę 20 ml 8 M HNO_3 (frakcja łączona z poprzednią),
- przez kolumnę przepuszczano 50 ml stężonego HCl (frakcja zawierająca głównie Th),
- Pu wypłukiwano z ostatnią frakcją, przepuszczając przez kolumnę 25 ml mieszaniny 0.1 M HF i 0.1 M HCl ,

d) Źródło alfa - spektrometryczne (metoda współstrącania z NdF_3) Przygotowanie źródła alfa - spektrometrycznego przeprowadzano według takiej samej metodyki jak w przypadku poprzedniej procedury (Dodatek B, 1 etap, punkt d).

2. etap - wydzielanie Am

Materiałem wyjściowym w tym etapie, była frakcja z Am po oznaczeniach Pu (procedura „Separacja Pu”).

„roztwór A” - roztwór 1 M HNO_3 w metanolu (95 %),

„roztwór B” - mieszanina 0,1 M HCl i 0,5 M NH_4SCN w metanolu (80 %),

„roztwór C” - roztwór 1,5 M HCl w metanolu (86 %).

a) Separacja matrycy próbki

- frakcję próbki zawierającą Am odparowywano do objętości ok. 10 ml, a następnie dodawano 500 ml H_2O ,
- próbę podgrzewano do rozpuszczenia osadu i do gorącego roztworu dodawano 50 ml 1 M $\text{C}_2\text{H}_2\text{O}_4$,
- po ostudzeniu, za pomocą wody amoniakalnej, ustalano pH 3 (strącenie szczawianów),
- próbkę dekantowano,
- osad (szczawiany) odwirowywano i ponownie dekantowano,

- osad rozpuszczano przy użyciu stężonego HNO_3 ,
- dodawano ok. 0.5 ml FeCl_3 o stężeniu ok. 10 mg Fe^{+3} w 1 ml i tak otrzymany roztwór odparowywano do objętości ok. 10 ml,
- dodawano 50 ml H_2O i roztwór przenoszono do jednorazowego naczynia,
- dodawano wody amoniakalnej, do ustalenia pH 9 (wytrącenie $\text{Fe}(\text{OH})_3$),
- powstały osad odwirowywano, dekantowano i rozpuszczano w ok. 2 - 3 ml stężonego HNO_3 , a następnie przeprowadzano w 4 M HNO_3 ,

b) Separacja Am i REE - usuwanie śladów Th

- przez kolumnę (oryginalną TRISKEM) wypełnioną żywicą TEVA przepuszczano 20 ml 4 M HNO_3 (uaktywnienie kolumny), a następnie próbkę,
- kolumnę przepłukiwano 10 ml 4 M HNO_3 (eluat - frakcja zawierająca Am)

c) Separacja Am - usuwanie REE

- eluat z poprzedniego kroku procedury odparowywano i dodawano kilka ml (2-3) stężonego HNO_3 i kilka kropli (2-3) stężonego HClO_4 w celu pozbycia się śladów żywicy TEVA,
- próbkę odparowywano i przeprowadzano w „roztwór A”,
- przez kolumnę zawierającą żywicę DOWEX 1x8 (procedura „Separacja Pu”) przepuszczano 50 ml „roztworu A” a następnie próbkę,
- kolumnę przepłukiwano 50 ml „roztworu A”,
- następnie przepuszczano 50 ml „roztworu B” (wyplukanie REE)
- przez kolumnę przepuszczano 50 ml „roztworu C” (eluat - frakcja zawierająca Am),

Otrzymaną frakcję odparowywano i dodawano ok. 2 ml stężonego HCl i 20 ml H_2O . Z tak otrzymanego roztworu wykonywano źródło Am alfa - spektrometryczną metodą współstrącania z NdF_3 (Dodatek B, 1. etap, punkt d).