



INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ
IM. HENRYKA NIEWODNICZAŃSKIEGO
POLSKIEJ AKADEMII NAUK

Praca doktorska

Ewa Nalichowska

**Badanie dynamiki zmian aktywności wybranych
izotopów promieniotwórczych w atmosferze przy
użyciu metod eksploracji danych**

Promotor: **prof. dr hab. Jerzy Wojciech Mietelski**

Promotor pomocniczy: **dr inż. Renata Kierepko**

Kraków, 2019

Podziękowania

Panu prof. dr hab. Jerzemu Wojciechowi Mietelskiemu i Pani dr inż. Renacie Kierepko dziękuję za poświęcony mi czas, merytoryczne dyskusje i wprowadzenie w tajniki pomiarów spektrometrycznych próbek środowiskowych.

Pracownikom i doktorantom Zakładu Fizykochemii Jądrowej, szczególnie Panu mgr inż. Krzysztofowi Gorzkiewiczowi dziękuję za pomoc w prowadzeniu pomiarów gamma spektrometrycznych.

Pracownikom i doktorantom Laboratorium Pomiarów Radiometrycznych dziękuję za udostępnienie spektrometru promieniowania gamma i pomoc w prowadzeniu pomiarów.

Panu dr hab. Tadeuszowi Przylibskiemu i Pani dr inż. Agacie Kowalskiej z Zakładu Geologii i Wód Mineralnych Wydziału Geoinżynierii, Górnictwa i Geologii Politechniki Wrocławskiej dziękuję za udostępnienie 12 spektrometrów promieniowania alfa i pomoc w prowadzeniu pomiarów.

Panu prof. dr hab. Zbigniewowi Ustrnulowi, dyrektorowi krakowskiego oddziału Instytutu Meteorologii i Gospodarki Wodnej Państwowego Instytutu Badawczego, dziękuję za udostępnienie danych meteorologicznych i pomoc w ich zrozumieniu.

*Pracę pragnę zadedykować mojemu mężowi Tomaszowi
i córce Julii, bez których wsparcia na pewno by nie powstała.*

Spis treści

I.	Izotopy promieniotwórcze w atmosferze	4
1.	Izotopy promieniotwórcze	4
2.	Prawo rozpadu promieniotwórczego.....	6
3.	Sukcesywny rozpad promieniotwórczy	8
4.	Źródła izotopów promieniotwórczych w atmosferze	12
4.1.	Izotopy pochodzenia naturalnego.....	13
4.2.	Izotopy antropogeniczne.....	17
5.	Rozprzestrzenianie się izotopów promieniotwórczych w atmosferze	23
5.1.	Aerozole atmosferyczne	23
6.	Izotopy będące przedmiotem badań.....	31
6.1.	Izotopy plutonu	31
6.2.	Cs-137	34
6.3.	K-40.....	35
6.4.	Pb-210.....	36
6.5.	Be-7	37
6.6.	Na-22.....	37
7.	Dawki promieniowania jonizującego w środowisku.....	38
II.	Badania własne	46
1.	Cel i motywacja pracy.....	46
2.	Materiały i metody	47
2.1.	Opis materiału badawczego i zastosowanych metod pomiarowych	47
2.2.	Charakterystyka geograficzna i meteorologiczna miejsca poboru próbek.....	48
2.3.	Przygotowanie materiału badawczego do pomiarów spektrometrycznych.....	50
2.4.	Zastosowane metody spektrometrii jądrowej.....	52
2.5.	Metody eksploracji danych.....	67
3.	Wyniki pomiarów	74
3.1.	Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych	74
3.2.	Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych	88
4.	Wyniki analiz i modelowania	94
4.1.	Badanie wpływu rodzaju detektora oraz geometrii pomiarowej na pomiary stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych	94
4.2.	Analiza obserwacji odległych.....	109
4.3.	Analiza korelacji wzajemnych między izotopami gamma promieniotwórczymi w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego	121
4.4.	Analiza korelacji wzajemnych między izotopami gamma promieniotwórczymi w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych.....	127

4.5.	Analiza korelacji wzajemnych między izotopami gamma promieniotwórczymi w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych	129
4.6.	Analiza korelacji wzajemnych między izotopami plutonu i izotopami gamma promieniotwórczymi w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego	130
4.7.	Analiza korelacji wzajemnych między izotopami plutonu i izotopami gamma promieniotwórczymi w próbkach aerozoli atmosferycznych	133
4.8.	Analiza korelacji między izotopami gamma promieniotwórczymi w tygodniowych i miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych, a stężeniem pyłu zawieszonego w powietrzu ...	136
4.9.	Analiza korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności izotopów alfa i gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych i w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego	139
4.10.	Badanie źródeł izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych oraz w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	144
4.11.	Analiza zależności stężenia oraz depozycji aktywności izotopów promieniotwórczych w badanych próbkach od wybranych wskaźników meteorologicznych.....	149
4.12.	Analiza struktury szeregów czasowych	155
4.13.	Próba oszacowania dawek pochodzących od ekspozycji zewnętrznej i wewnętrznej na promieniowanie jonizujące emitowane przez wybrane izotopy zawarte w powietrzu	179
III.	Dyskusja wyników, wnioski i podsumowanie	181
IV.	Bibliografia	198
V.	Spis tabel.....	204
VI.	Spis rysunków	208
VII.	Spis wykresów	209
VIII.	Aneksy	214
1.	Wyniki modelu regresji wielokrotnej i analizy korelacji stężenia oraz depozycji aktywności radioizotopów w badanych próbkach od wybranych wskaźników meteorologicznych	214
2.	Skrypty funkcji zastosowanych w FFT.....	227
2.1.	Funkcja obliczająca Szybką Transformatę Fouriera	227
2.2.	Funkcja lokalizująca dominujące częstotliwości na widmie amplitudowym	227
2.3.	Funkcja wyznaczająca składowe szeregu czasowego	228
3.	Wyniki testów Kruskala Wallisa zależności wyników pomiarów od rodzaju detektora i konfiguracji filtra powietrza	229
4.	Procedura radiochemicznego wydzielania izotopów plutonu z próbek aerozoli atmosferycznych i próbek całkowitego opadu atmosferycznego.....	232
5.	Wyniki pomiarów.....	234
6.	Spis detektorów wykorzystanych w pomiarach gamma spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych.....	258

I. Izotopy promieniotwórcze w atmosferze

1. Izotopy promieniotwórcze

Radioizotopy (izotopy promieniotwórcze) to izotopy, których jądra atomowe są nietrwałe, tzn. niestabilne energetycznie i ulegają samorzutnym rozpadom promieniotwórczym. Rozpad promieniotwórczy oznacza przekształcenie jądra atomowego w jądro tego samego lub innego pierwiastka poprzez emisję cząstki naładowanej lub obniżenie stanu energetycznego jądra w wyniku emisji fali elektromagnetycznej (kwantu promieniowania gamma). Każdy izotop promieniotwórczy można scharakteryzować m.in. na podstawie typu rozpadu, któremu ulega oraz widma emisyjnego towarzyszącego mu promieniowania elektromagnetycznego lub korpuskularnego. Do rozpadów promieniotwórczych zalicza się:

Rozpad alfa - polega na emisji przez ciężkie, niestabilne energetycznie jądro atomowe cząstki alfa składającej się z dwóch protonów i dwóch neutronów, a więc będącej tym samym jądrem He-4. Oddzielenie się cząstki alfa od macierzystego jądra następuje w wyniku kwantowego zjawiska zwanego tunelowaniem cząstki przez barierę potencjału (w tym przypadku potencjału jądra). Widmo emisyjne promieniowania alfa zawsze jest liniowe, co potwierdza, że tak jak w atomie również w jądrze atomowym poziomy energetyczne są skwantowane. Liczba linii emisyjnych promieniowania alfa zależy od stopnia deformacji jądra pochodnego (im większa deformacja tym więcej linii emisyjnych), natomiast energie poszczególnych linii zależą od liczby atomowej Z jądra macierzystego (przy danej masie im większy ładunek jądra tym większa energia cząstek alfa) i zwykle mieszczą się w przedziale od 4 do 9 MeV [5]. Podsumowując, w wyniku rozpadu alfa powstaje jądro pierwiastka o liczbie atomowej Z mniejszej o 2 i liczbie masowej A mniejszej o 4 oraz jądro helu (reguła Soddy'ego–Fajansa). Energia rozpadu Q dzielona jest między cząstkę alfa i jądro odrzutu w sposób ściśle zdeterminowany dla izotopu macierzystego (co wynika z zasad zachowania energii i pędu) [8]. Schemat przemiany alfa (wzór 1):



Rozpad beta - jest to proces samorzutnej przemiany jądra atomowego w jądro izobaru o liczbie atomowej Z , u którego podstaw leży fizyka oddziaływań słabych. Podczas rozpadu β jeden z nukleonów jądra przechodzi z jednego stanu kwantowego do drugiego, co powoduje powstanie elektronu i antyneutrino (lub pozytonu i neutrino). W istocie protony i neutrony składają się z kwarków, czyli cząstek elementarnych mających ładunek tzw. koloru (tzn. pola oddziaływań silnych jądrowych). Proton składa się z kwarków walencyjnych i pola oddziaływań silnych (tzw. morza), w którym znajdują się pary kwark-antykwar i kwanty pola oddziaływań silnych, tj. gluony. O własnościach protonu decydują kwarki walencyjne. W przypadku protonu są to dwa kwarki górne i jeden dolny (uup), natomiast w przypadku neutronu dwa walencyjne kwarki dolne i jeden górny (ddu). W rozpadzie β^- walencyjny kwark dolny przechodzi w górny (neutron przechodzi proton) poprzez emisję bozonu pośredniczącego W^- , który następnie rozpada się na elektron i antyneutrino elektronowe. W rozpadzie β^+ walencyjny kwark górny przechodzi w dolny (proton przechodzi w neutron) poprzez emisję bozonu pośredniczącego W^+ , który następnie

rozpada się na pozyton i neutrino elektronowe. Można jeszcze wyróżnić tzw. odwrotny rozpad β^+ (wychwyt K), gdzie jeden z elektronów atomu jest przechwytywany przez proton z jądra atomowego, w wyniku czego powstaje neutron (pozostający w jądrze) oraz neutrino elektronowe. W rozpadzie β podział energii Q uwalnianej podczas rozpadu ma charakter stochastyczny, co oznacza że widmo emisyjne promieniowania β jest widmem ciągłym (w przeciwieństwie do widma promieniowania alfa). Energie promieniowania beta mieszczą się w bardzo szerokim zakresie od kilkunastu keV do nawet 16 MeV [5].

Schematy rozpadów beta można przedstawić na trzech poziomach struktury materii: kwarkowym, nukleonowym oraz atomowym (wzory 2-10):

✓ **Rozpad β^-**

$$d \rightarrow u + e^- + \bar{\nu}_e + Q \quad (2)$$

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e + Q \quad (3)$$

$${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z+1} Y + e^- + \bar{\nu}_e + Q \quad (4)$$

✓ **Rozpad β^+**

$$u \rightarrow d + e^+ + \nu_e + Q \quad (5)$$

$$p \rightarrow n + e^+ + \nu_e + Q \quad (6)$$

$${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + e^+ + \nu_e + Q \quad (7)$$

✓ **Wychwyt K**

$$u + e^- \rightarrow d + \nu_e + Q \quad (8)$$

$$p + e^- \rightarrow n + \nu_e + Q \quad (9)$$

$${}^A_Z X + e^- \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + \nu_e + Q \quad (10)$$

Zwykle w wyniku rozpadu promieniotwórczego alfa lub beta powstaje jądro pochodne, które nadal jest niestabilne, tj. znajduje się w wyższym niż normalnie stanie energetycznym. Zjawisko powrotu wzbudzonego jądra do stanu podstawowego (o najmniejszej możliwej energii) następuje w wyniku **emisji promieniowania gamma** lub zjawiska **konwersji wewnętrznej**. W obu zjawiskach nadmiar energii jądra jest z niego unoszony. W pierwszym przypadku energia wzbudzenia jest emitowana w postaci fotonów, w drugim natomiast jest ona przekazywana za pomocą wirtualnego fotonu jednemu z elektronów znajdujących się na wewnętrznych powłokach atomu. W wyniku konwersji wewnętrznej elektron, który przejął energię wzbudzenia jądra może zostać wyrzucony z atomu, pozostawiając po sobie wakans (puste miejsce) i powodując tym samym przejście atomu do wyższego stanu energetycznego. W ten sposób wzbudzenie jądra przechodzi we wzbudzenie całego atomu (podobnie jak w przypadku zjawiska fotoabsorbpcji). Stan ten jednak również nie jest trwały, a powrót atomu do podstawowego poziomu energetycznego odbywa się jednym z dwóch kanałów: poprzez **emisję promieniowania charakterystycznego X** lub **emisję tzw. elektronu Augera**. Prawdopodobieństwo deekscytacji atomu poprzez emisję kwantów promieniowania X jest większe dla atomów o dużej liczbie porządkowej Z , podczas gdy prawdopodobieństwo

wystąpienia zjawiska Augera jest większe dla lekkich pierwiastków o małej liczbie atomowej [3].

Powrót atomu do stanu podstawowego poprzez emisję elektronu polega na bezpośrednim przekazaniu nadmiarowej energii jednemu z elektronów z zewnętrznych powłok atomowych (tzw. elektron Augera), który unosi ją w postaci swojej energii kinetycznej. Aby zjawisko to mogło zaistnieć różnica energii między powłoką, z której został usunięty elektron (zwykle powłoką K), a powłoką wyższą (np. L) musi być większa niż energia wiązania elektronu Augera (wzór 11):

$$E_K - E_L \geq E_a \quad (11)$$

Gdzie:

E_K – krawędź absorpcji na powłoce K

E_L – krawędź absorpcji na powłoce L

E_a – krawędź absorpcji na powłoce, z której emitowany jest elektron Augera (powłoka L lub wyższa)

Drugim kanałem deekscytacji atomu jest zjawisko emisji promieniowania charakterystycznego X , zwane inaczej fluorescencją rentgenowską. Kwanty promieniowania rentgenowskiego powstają w wyniku przegrupowania elektronów na powłokach elektronowych wewnątrz atomu, następującego w skutek zapełniania miejsca po wybitym elektronie przez elektrony z wyższych powłok. Każdy przeskok elektronu z powłoki wyższej na niższą powoduje powstanie nadmiaru energii, która emitowana jest następnie w postaci fotonu promieniowania X . Częstotliwość promieniowania fluorescencyjnego zgodnie z prawem Mosley'a rośnie z kwadratem liczby atomowej Z pierwiastka według wzoru 12:

$$h\nu = a(Z - b)^2 \quad (12)$$

Gdzie:

h – stała Plancka

ν – częstotliwość promieniowania fluorescencyjnego

a – stała zależna od liczb kwantowych opisujących poziomy energetyczne, między którymi następuje przejście

b – stała ekranowania

2. Prawo rozpadu promieniotwórczego

Prawo rozpadu promieniotwórczego określa sposób, w jaki zmienia się w czasie liczba jąder promieniotwórczych. Aby je sformułować należy założyć, że w zbiorze N identycznych nuklidów promieniotwórczych, każdy z nich rozpada się z tym samym, stałym w czasie prawdopodobieństwem λ , które dodatkowo jest niezależne od czynników zewnętrznych (takich jak temperatura, wilgotność, ciśnienie, stężenie) oraz od czasu istnienia radionuklidu [2]. Prawdopodobieństwo rozpadu pojedynczego jądra w jednostce czasu λ nosi nazwę **stałej rozpadu** i ma wymiar odwrotności czasu [1/s]. Tak długo jak zbiór N nie zostanie uzupełniony o nowe źródło radionuklidów, ubytek jąder promieniotwórczych w jednostce czasu można opisać równaniem kinetycznym dla reakcji pierwszego rzędu (wzór 13):

$$dN = -\lambda N dt \quad (13)$$

Przekształcając to równanie do postaci (wzór 14):

$$\left| \frac{dN}{dt} \right| = \lambda N \quad (14)$$

Otrzymujemy liczbę rozpadów zachodzących w danym zbiorze jąder promieniotwórczych w substancji w jednostce czasu. Wielkość tę nazywamy **aktywnością substancji radioaktywnej**. Jednostką aktywności jest bekerel ($1 \text{ Bq} = 1 \text{ rozpad/s}$). Z uwagi na bezwymiarowość liczby jąder promieniotwórczych, aktywność tak jak i stała rozpadu ma wymiar odwrotności czasu [$1/s$].

W praktyce pomiarowej zamiast samej aktywności dużo częściej używa się pojęcia **stężenia aktywności**, które określa aktywność przypadającą na jednostkę masy (stężenie masowe aktywności) lub objętości (stężenie objętościowe aktywności) badanej mieszaniny. Jednostką stężenia aktywności wykorzystywaną w tej pracy jest głównie [Bq/m^3].

Wracając do powyższego równania, separując zmienne i całkując po czasie od chwili $t_0 = 0$, (kiedy liczba jąder promieniotwórczych $N = N_0$) do wybranej chwili t :

$$\int_{N_0}^N \frac{dN}{N} = - \int_0^t \lambda dt$$

$$\ln\left(\frac{N}{N_0}\right) = -\lambda t$$

otrzymujemy końcowy wzór na prawo rozpadu promieniotwórczego (wzór 15):

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (15)$$

W celu określenia całkowitej stałej rozpadu, tj. całkowitego prawdopodobieństwa na jednostkę czasu dla jądra promieniotwórczego, posiadającego więcej niż jeden kanał rozpadu, należy zsumować poszczególne stałe (wzór 16) [1]:

$$\lambda = \sum_i \lambda_i \quad (16)$$

Gdzie:

i – kanał rozpadu

λ_i – prawdopodobieństwo rozpadu jądra przez i – ty kanał rozpadu

Po obustronnym przemnożeniu powyższego równania przez N można wyznaczyć całkowitą aktywność zbioru radionuklidów (wzór 17):

$$N\lambda = N \sum_i \lambda_i \quad (17)$$

przy czym cząstkowa aktywność radionuklidów rozpadających się przez i – ty kanał rozpadu wynosi (wzór 18):

$$A_i = \lambda_i N = \lambda_i N_0 e^{-\lambda t} \quad (18)$$

Gdzie λ – całkowita stała rozpadu

Oprócz stałej rozpadu, istnieją jeszcze dwie inne powiązane ze sobą wielkości pozwalające określić szybkość rozpadu promieniotwórczego, tj. **czas półrozpadu** $T_{1/2}$ [s] oraz **średni czas życia jądra promieniotwórczego** τ [s]. Czas półrozpadu to czas, po którym pozostaje połowa z początkowej liczby rozpadających się radionuklidów. Wstawiając do wzoru na prawo rozpadu promieniotwórczego w miejsce $N \rightarrow \frac{1}{2}N_0$, a w miejsce $T \rightarrow T_{1/2}$ można otrzymać zależność $T_{1/2}(\lambda)$ (wzór 19):

$$\begin{aligned}\frac{1}{2}N_0 &= N_0 e^{-\lambda T_{1/2}} \\ \frac{1}{2} &= e^{-\lambda T_{1/2}} \\ \ln(2) &= \lambda T_{1/2} \\ T_{1/2} &= \frac{\ln(2)}{\lambda}\end{aligned}\quad (19)$$

Aby wyznaczyć z kolei średni czas życia jądra promieniotwórczego, należy najpierw określić średni czas życia wszystkich jąder z rozpatrywanego zbioru, a potem podzielić go przez początkową liczbę jąder. W czasie od t do $t+dt$ rozpadnie się grupa $dN = -\lambda N(t)dt$ jąder co oznacza, że $\lambda N(t)dt$ jąder ma czas życia równy t . Żeby uzyskać średni czas życia całego zbioru należy najpierw przemnożyć czas życia jąder przez ich liczebność i następnie scałkować (wzór 20) [1]:

$$\bar{t}_0 = \int_0^{\infty} t \lambda N dt = \int_0^{\infty} t \lambda N_0 e^{-\lambda t} dt = \frac{N_0}{\lambda} \quad (20)$$

Stąd średni czas życia pojedynczego jądra wynosi (wzór 21):

$$\tau = \frac{\bar{t}_0}{N_0} = \frac{1}{\lambda} = \frac{T_{1/2}}{\ln(2)} \quad (21)$$

3. Sukcesywny rozpad promieniotwórczy

Powszechnie występujące w przyrodzie zjawisko, w którym wynikiem rozpadu promieniotwórczego jest, zamiast jądra stabilnego, kolejne jądro promieniotwórcze rozpadające się z inną niż izotop macierzysty stałą rozpadu. Znajomość procesów zachodzących pomiędzy izotopem macierzystym, a kolejnymi izotopami pochodnymi w mieszaninie substancji radioaktywnych pozwala na prognozowanie w czasie zmian poziomu radioaktywności w badanym medium. W układzie zamkniętym, w którym nie dochodzi ani do ucieczki ani napływu radioizotopów, o charakterze zmian aktywności mieszaniny promieniotwórczej w czasie decyduje jedynie wzajemny stosunek kolejnych stałych rozpadu. Przy założeniu, że izotop 1 rozpada się ze stałą rozpadu λ_1 do izotopu 2, a ten następnie rozpada się ze stałą λ_2 do izotopu 3, równania kinetyczne tych rozpadów przyjmują postać (wzory 22,23) [1]:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (22)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (23)$$

Warunki początkowe dla chwili $t = 0$: $N_1 = N_{01}$, $N_2 = N_{02}$

Rozwiązując powyższe równania otrzymujemy wzory na dwa pierwsze człony sukcesywnego rozpadu promieniotwórczego. Pierwsze równanie (wzór 22) rozwiązujemy poprzez separację zmiennych i obustronne całkowanie po czasie (tak jak przy wyprowadzeniu ogólnego wzoru na rozpad promieniotwórczy) (wzór 24):

$$N_1 = N_{01}e^{-\lambda_1 t} \quad (24)$$

Z kolei drugie równanie (wzór 23) jest równaniem liniowym niejednorodnym rzędu pierwszego, które można zapisać w postaci:

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t}$$

Aby znaleźć całkę ogólną tego równania należy najpierw wyznaczyć całkę ogólną równania liniowego jednorodnego:

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = 0$$

W tym celu rozwiązujemy równanie charakterystyczne:

$$r + \lambda_2 = 0 \rightarrow r = -\lambda_2$$

Stąd całka ogólna równania jednorodnego wynosi $N_2^* = Ce^{-\lambda_2 t}$, gdzie C jest dowolną stałą.

Następnie szukamy dowolnej całki szczególnej równania niejednorodnego korzystając z metody uzmienniania stałych (metoda Lagrange'a) [44]:

$$C(t)'e^{-\lambda_2 t} = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t}$$

$$C(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t}$$

Całka szczególna równania niejednorodnego wynosi: $N_2^{**} = C(t)N_2^* = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} e^{-\lambda_2 t}$

Stąd całka ogólna:

$$N_2 = N_2^* + N_2^{**} = Ce^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} e^{-\lambda_2 t}$$

Uwzględniając podane powyżej warunki początkowe, wyznaczamy stałą C

$$N_{02} = C + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} \rightarrow C = N_{02} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01}$$

Po wstawieniu wartości stałej do równania niejednorodnego otrzymujemy końcową formułę na drugi człon sukcesywnego rozpadu promieniotwórczego (wzór 25):

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{02} e^{-\lambda_2 t} \quad (25)$$

Stan, w którym aktywności wszystkich izotopów sukcesywnych w mieszaninie radioaktywnej pozostają w stałej względem siebie proporcji nazywamy **równowagą promieniotwórczą**. Aby taki stan mógł się ustalić, czas półrozpadu izotopu macierzystego musi być znacznie dłuższy od czasu półrozpadu izotopu pochodnego tj.

$$\lambda_1 \ll \lambda_2, \lambda_1 \approx 0$$

Wtedy aktywności izotopu macierzystego A_1 oraz izotopu pochodnego A_2 wynoszą (wzory 26, 27):

$$A_1 = \lambda_1 N_1 = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t} \cong \lambda_1 N_{01} = const \quad (26)$$

$$A_2 = \lambda_2 N_2 = \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{02} e^{-\lambda_2 t} \quad (27)$$

Zakładając, że w chwili $t = 0$ $N_{02} = 0$ i pamiętając o warunku na stałe rozpadu

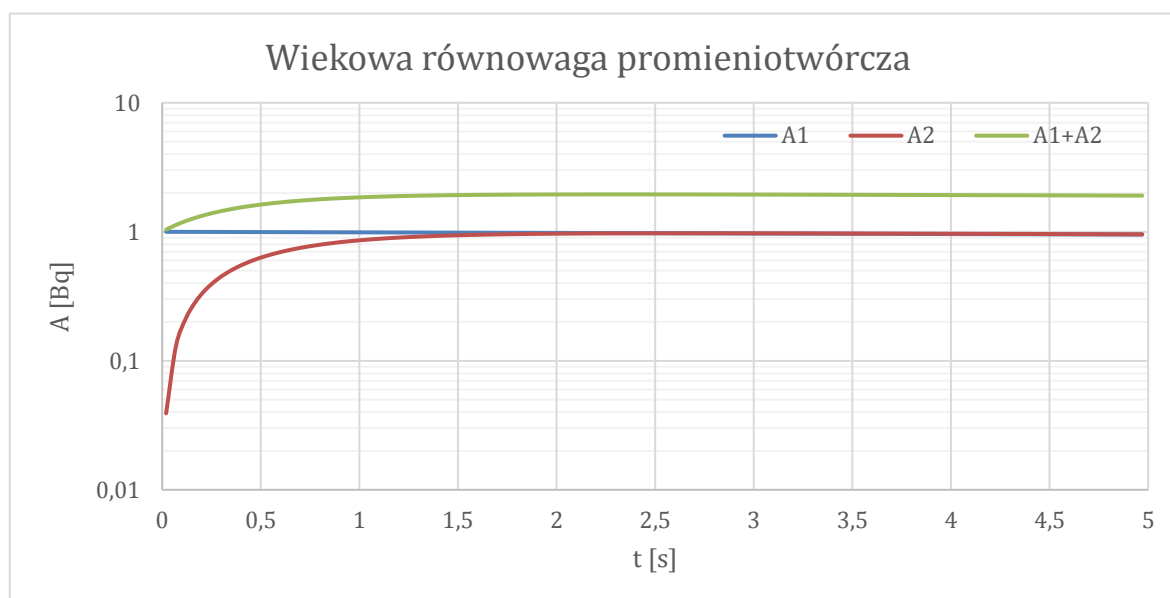
$$A_2 \cong \lambda_1 N_{01} (1 - e^{-\lambda_2 t})$$

Aktywność izotopu pochodnego początkowo wzrasta, ale po czasie t , równym kilku okresom półrozpadu tego izotopu, stabilizuje się ona na poziomie aktywności izotopu macierzystego (wzór 28):

$$A_2 \cong \lambda_1 N_{01} = const \quad (28)$$

Aktywność sumaryczna (wzór 29):

$$A = A_1 + A_2 = 2A_1 = const \quad (29)$$



Wykres 1. Wiekowa równowaga promieniotwórcza.

Przypadek, kiedy aktywności wszystkich izotopów w układzie są w przybliżeniu stałe w czasie i mają tę samą wartość nazywamy **wiekową równowagą promieniotwórczą** (wykres 1).

Inną możliwą relacją między izotopem macierzystym, a pochodnym jest sytuacja, kiedy szybkość rozpadu radionuklidu pochodnego nadal jest większa niż izotopu macierzystego, ale różnice te

nie są już aż tak duże jak w pierwszym przypadku. Aktywności izotopów wynoszą wówczas (wzory 30, 31):

$$A_1 = \lambda_1 N_1 = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (30)$$

$$A_2 = \lambda_2 N_2 = \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (31)$$

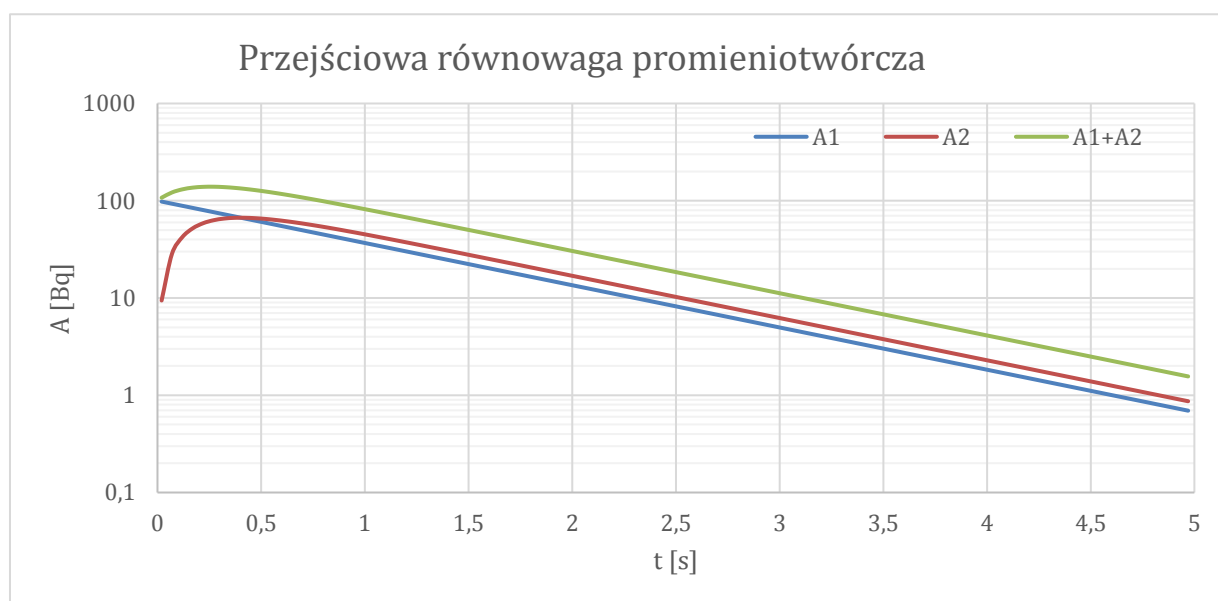
Po kilku okresach półrozpadu, człon $e^{-\lambda_2 t}$ można zaniedbać. Wtedy aktywność izotopu pochodnego wynosi (wzór 32):

$$A_2 \cong \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (32)$$

Wynika stąd, że oba izotopy w pewnym momencie zaczynają rozpadać się z tą samą stałą rozpadu równą λ_1 .

Aktywność sumaryczna (wzór 33):

$$A = A_1 + A_2 = \left(1 + \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}\right) \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (33)$$



Wykres 2. Przejściowa równowaga promieniotwórcza.

Stan, w którym wszystkie izotopy promieniotwórcze w układzie rozpadają się z tą samą szybkością równą szybkości rozpadu izotopu macierzystego nazywamy **przejściową równowagą promieniotwórczą** (wykres 2).

Ostatni przypadek, który rozważa się dla sukcesywnego rozpadu promieniotwórczego dotyczy sytuacji, kiedy stała rozpadu izotopu pochodnego jest mniejsza od stałej rozpadu izotopu macierzystego.

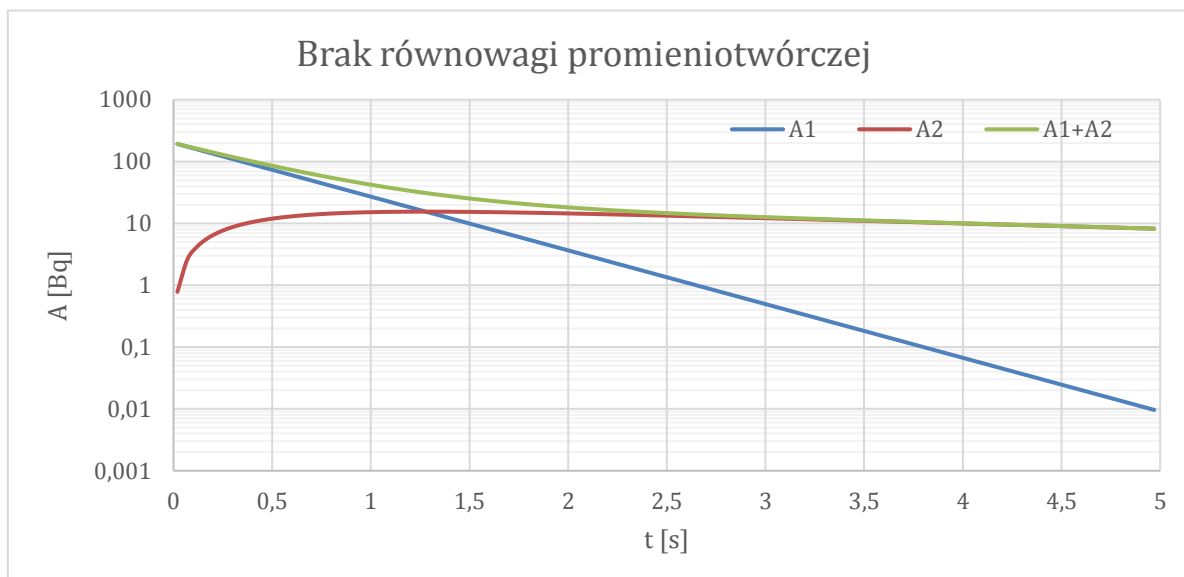
$$\lambda_1 > \lambda_2$$

Po kilku okresach półrozpadu izotopu macierzystego, jego aktywność wynosi $A_1 \approx 0$, natomiast aktywność izotopu pochodnego wynosi (wzór 34):

$$A_2 \cong \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} N_{01} e^{-\lambda_2 t} \quad (34)$$

Aktywność sumaryczna (wzór 35):

$$A = A_1 + A_2 \cong A_2 \quad (35)$$



Wykres 3. Brak równowagi promieniotwórczej.

Oznacza to, że po pewnym czasie izotop macierzysty całkowicie się rozpadnie, natomiast izotop pochodny będzie nadal się rozpadał ze stałą rozpadu równą λ_2 . Stan taki nazywamy **brakiem równowagi promieniotwórczej** (wykres 3).

4. Źródła izotopów promieniotwórczych w atmosferze

Izotopy promieniotwórcze występujące w środowisku naturalnym towarzyszą człowiekowi od początku jego istnienia. Zdecydowana większość promieniotwórczości, jaką obserwujemy w przyrodzie jest pochodzenia naturalnego, a tylko niewielka jej część została wprowadzona do środowiska w wyniku działalności człowieka. Niemniej jednak to właśnie cywilizacyjne źródła skażenia promieniotwórczego, z uwagi na możliwość stworzenia potencjalnego zagrożenia radiacyjnego dla środowiska (w tym przede wszystkim dla istot żywych) są szczególnie wnikliwie monitorowane i analizowane. Badanie procesów transportu radionuklidów w środowisku, ich wzajemnych korelacji, zachowania w różnych typach ekosystemów oraz wpływu emitowanego przez nie promieniowania jonizującego na organizmy żywe jest przedmiotem zainteresowania wielu dziedzin, które razem tworzą interdyscyplinarną naukę zwaną **radioekologią**.

Choć we wszystkich geosferach składających się na powłokę ziemską można znaleźć radioizotopy pochodzenia **naturalnego** i **antropogenicznego**, to z punktu widzenia radioekologii jednym z najważniejszych badanych elementów środowiska jest atmosfera. Po pierwsze zawiera ona izotopy promieniotwórcze pochodzące ze wszystkich istniejących źródeł -

izotopy kosmogeniczne, izotopy pochodzenia ziemskiego oraz izotopy antropogeniczne, a po drugie pełni ona kluczową rolę w procesach ich rozprzestrzeniania na kuli ziemskiej.

4.1. Izotopy pochodzenia naturalnego

Izotopy pierwotne – izotopy promieniotwórcze, których okres półrozpadu jest porównywalny lub dłuższy od wieku Ziemi (ok. 4,5 mld lat). Są to izotopy, które powstały, jako efekt procesów nukleosyntezy w gwiazdach (zachodzących w wyniku wybuchów supernowych) i przetrwały do dziś, będąc jednymi z elementów budujących skorupę ziemską. Wśród nich możemy wyróżnić izotopy, które zapoczątkowują naturalne szeregi promieniotwórcze: U-235, U-238, Th-232 oraz izotopy, które występują samodzielnie w skorupie ziemskiej, takie jak Rb-87, Sm-147, La-138 czy K-40 (tabela 1). Wśród radionuklidów pierwotnych, które nie współtworzą szeregów promieniotwórczych można rozróżnić jeszcze takie, których czas półrozpadu przekracza ponad milion razy czas istnienia Ziemi ($T_{1/2} > 10^{16} \text{ lat}$). Są to m.in. V-50, Ge-76, Se-82, Zr-96, Mo-100, Te-128, Te-130, Nd-150 oraz Bi-209 [4]. Z uwagi na ich bardzo małą abundancję oraz bardzo długie czasy półrozpadu, nie są one uwzględniane w szacowaniu dawek promieniowania jonizującego, traktując je jak gdyby były izotopami stabilnymi.

Tabela 1. Najważniejsze izotopy pierwotne występujące w skorupie ziemskiej [4,5].

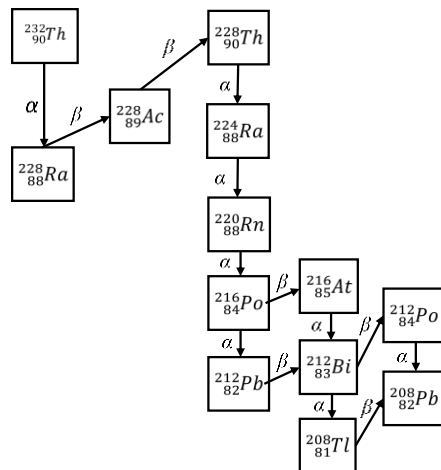
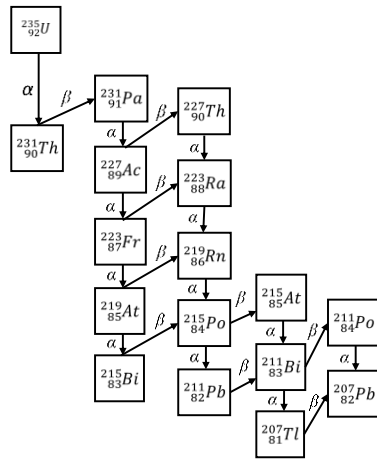
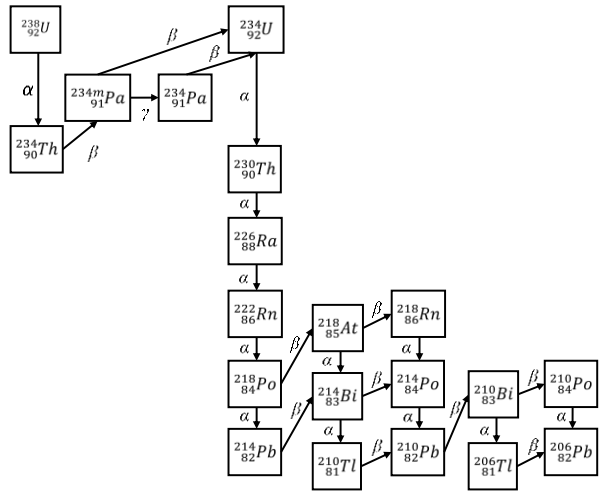
Izotop	Czas połowicznego rozpadu [lata]	Abundancja [%]	Rodzaj rozpadu
⁴⁰ K	$1,277 \cdot 10^9$	0,0117	β^- , K
⁸⁷ Rb	$4,88 \cdot 10^{10}$	27,83	β^-
¹¹³ Cd	$9,0 \cdot 10^{15}$	12,22	β^-
¹¹⁵ In	$4,4 \cdot 10^{14}$	95,72	β^-
¹²³ Te	$1,3 \cdot 10^{13}$	0,905	β^-
¹³⁸ La	$1,06 \cdot 10^{11}$	0,902	β^- , EC
¹⁴² Ce	$5 \cdot 10^{15}$	11,11	α
¹⁴⁴ Nd	$2,1 \cdot 10^{15}$	23,80	α
¹⁴⁷ Sm	$1,06 \cdot 10^{11}$	15,0	α
¹⁴⁸ Sm	$7 \cdot 10^{15}$	11,3	α
¹⁴⁹ Sm	$4 \cdot 10^{14}$	13,82	α
¹⁵² Gd	$1,1 \cdot 10^{14}$	0,20	α
¹⁷⁴ Hf	$2 \cdot 10^{15}$	0,162	α
¹⁷⁶ Lu	$3,8 \cdot 10^{10}$	2,59	β^-
^{180m} Ta	$1,2 \cdot 10^{15}$	0,012	β^- , EC
¹⁸⁶ Os	$2,0 \cdot 10^{15}$	1,58	α
¹⁸⁷ Re	$4,2 \cdot 10^{10}$	62,60	β^-
¹⁹⁰ Pt	$6,5 \cdot 10^{11}$	0,012	α
¹⁹² Pt	$1 \cdot 10^{15}$	0,78	α
²³² Th	$1,405 \cdot 10^{10}$	100	α
²³⁵ U	$7,037 \cdot 10^8$	0,71	α
²³⁸ U	$4,468 \cdot 10^9$	99,28	α

Z uwagi na trudności w detekcji promieniowania jonizującego, które występują w przypadku większości izotopów pierwotnych, do ich pomiarów dużo lepiej nadaje się spektrometria masowa, pozwalająca zmierzyć masy atomowe poszczególnych izotopów w mieszaninie promieniotwórczej. Dzięki nowoczesnym spektrometrom masowym możliwe jest wykorzystywanie izotopów pierwotnych, jako tzw. radiochronometrów, używanych w datowaniu środowiskowym do określania wieku różnych formacji geologicznych. Najbardziej powszechne metody datowania wykorzystujące izotopy pierwotne, to metoda potas-argon, rubid-stront, samar-neodym oraz lutet-hafn (w przypadku izotopów samodzielnie występujących w przyrodzie) oraz metoda uranowo-torowa (w przypadku izotopów pierwotnych zapoczątkowujących szeregi promieniotwórcze) [11,12].

Warto wspomnieć, że w badaniach promieniotwórczości środowiska bardzo często komplementarnie używa się metod spektrometrii masowej wraz z metodami spektrometrii promieniowania jonizującego, np. przy identyfikacji źródeł pochodzenia izotopów antropogenicznych.

Naturalne szeregi promieniotwórcze - w przyrodzie występują obecnie trzy rodziny promieniotwórcze: szereg uranowo-radowy, uranowo-aktynowy oraz szereg torowy. W wyniku sukcesywnego rozpadu promieniotwórczego trzech spośród izotopów pierwotnych, tj. U-238, U-235 oraz Th-232 emitowane są tzw. **izotopy radiogeniczne**. W sumie są to 43 izotopy alfa i beta promieniotwórcze o liczbach atomowych od 81 do 92, czyli izotopy 12 pierwiastków: aktynu, toru, polonu, ołowiu, radonu, radu, bizmutu, talu, astatu, protaktynu, fransu oraz uranu. Wszystkie szeregi promieniotwórcze rozpadają się do stabilnych izotopów ołowiu: Pb-206, Pb-207 oraz Pb-208. Ważną cechą izotopów radiogenicznych są ich krótkie, w stosunku do izotopów pierwotnych, czasy półrozpadu. To powoduje, że w układzie zamkniętym szeregi promieniotwórcze występują w wiekowej równowadze promieniotwórczej. Tak jak już jednak wspomniano wcześniej, równowaga ta często zostaje zaburzona w wyniku napływu lub odpływu radioizotopów. Zjawiska te mogą być wynikiem jednego z czterech procesów: strącania/rozpuszczania, dyfuzji, odrzutu cząstki α lub ługowania [4].

Najbardziej istotnym z punktu widzenia ochrony radiologicznej zjawiskiem ucieczki w szeregach promieniotwórczych jest odpływ z układu gazowych izotopów radonu, tj. Rn-222, Rn-220 oraz Rn-219. Spośród tych trzech izotopów najważniejszą rolę w środowisku odgrywa Rn-222 (z uwagi na najdłuższy czas półrozpadu $T_{1/2} = 3,8$ dnia), który powstaje w wyniku rozpadu Ra-226 w szeregu uranowo – radowym. Produkty rozpadu radonu, to radioizotopy toksycznych metali ciężkich: bizmutu, polonu i ołowiu, które podczas inhalacji osiadają w płucach powodując ekspozycję wewnętrzną organizmu na promieniowanie jonizujące (więcej o dawkach środowiskowych w punkcie 7 rozdziału I). Poniżej schematy rozpadów szeregów promieniotwórczych (rysunek 1).



Rysunek 1. Naturalne szeregi promieniotwórcze [5].

Liczby masowe A kolejnych izotopów pochodnych w poszczególnych szeregach zmieniają się zgodnie z regułą (11):

- ✓ w szeregu uranowo - radowym $A = 4n + 2$
- ✓ w szeregu uranowo - aktynowym $A = 4n + 3$
- ✓ w szeregu torowym $A = 4n$

Izotopy kosmogeniczne – produkowane w wyniku oddziaływania promieniowania kosmicznego z atmosferą oraz z powierzchniowymi warstwami litosfery. Promieniowanie kosmiczne, zwane również **promieniowaniem pierwotnym**, jest to strumień cząstek naładowanych o energiach sięgających 10^{20} eV, składający się głównie z protonów (87%), cząstek alfa (11%), ciężkich jonów (1%) oraz elektronów (1%) [4]. Można rozróżnić w nim składową międzygalaktyczną oraz słoneczną, która z uwagi na cykliczność aktywności Słońca powoduje, że natężenie promieniowania kosmicznego zmienia się w czasie. W wyniku reakcji jądrowych zachodzących między promieniowaniem pierwotnym, a atomami pierwiastków znajdujących się w górnych warstwach atmosfery, powstaje **wtórne promieniowanie kosmiczne** składające się m.in. z protonów, neutronów, mionów, elektronów oraz fotonów promieniowania gamma. Cząstki te również wchodzą w rozmaite interakcje z otoczeniem tworząc tzw. kaskady hadronowe i elektromagnetyczne. Główne procesy oddziaływania promieniowania pierwotnego i wtórnego z atomami pierwiastków atmosfery i litosfery, które prowadzą do powstania izotopów kosmogenicznych to [4]:

- ✓ **spalacja** - polegająca na „kruszeniu” jąder atomowych przez wysoko energetyczne cząstki naładowane (najczęściej protony). Jądra atomowe, po zderzeniu z rozpedzoną do energii rzędu kilku GeV cząstką naładowaną, ulegają „rozkruszeniu”, w wyniku którego mogą emitować one zarówno pojedyncze nukleony, jak również lekkie jądra atomowe: He-2, He-3, He-4 [5]. Przykładem izotopów kosmogenicznych powstających w wyniku reakcji jądrowych cząstek spalacyjnych ze składnikami atmosfery są H-3, Be-7, Na-22, Al-26.
- ✓ **wychwyt radiacyjny neutronu** – reakcja jądrowa, polegająca na pochłonięciu przez jądro atomowe neutronu z towarzyszącą mu emisją promieniowania gamma. Przykładem izotopu kosmogenicznego powstającego w wyniku absorpcji przez jądro atomowe spowolnionego neutronu spalacyjnego jest C-14.
- ✓ **wychwyt radiacyjny mionu** - jest to oddziaływanie mionu pochodzącego z wtórnego promieniowania kosmicznego z jądrami atomowymi pierwiastków zawartych w atmosferze i litosferze. Inaczej niż w przypadku wychwytu neutronu, gdzie mamy do czynienia z oddziaływaniem silnym, za wychwyt radiacyjny mionu odpowiada oddziaływanie słabe. W tej reakcji polega ono na wymianie bozonu pośredniczącego między mionem (należącym do nieoddziałujących silnie leptonów), a kwarkami tworzącymi proton w jądrze atomowym. Przykładem izotopów kosmogenicznych powstających w tym procesie (choć nie jest to główny kanał) jest Cl-36 oraz Ar-37.

Poniżej przedstawiono zestawienie wybranych izotopów kosmogenicznych wraz opisem źródła ich pochodzenia (tabela 2).

Tabela 2. Wybrane izotopy kosmogeniczne [5].

Izotop	Czas połowicznego rozpadu [lata]	Rodzaj rozpadu	Źródła izotopu
${}^3_1\text{H}$	12,33	β^-	${}^6_3\text{Li}(n, {}^3_1\text{H}){}^4_2\text{He}$ ${}^{14}_7\text{N}(n, {}^3_1\text{H}){}^{12}_6\text{C}$ ${}^{16}_8\text{O}(p, {}^3_1\text{H}){}^{14}_8\text{O}$
${}^{14}_6\text{C}$	$5,730 \cdot 10^3$	β^-	${}^{11}_5\text{B}(\alpha, p){}^{14}_6\text{C}$ ${}^{13}_6\text{C}(n, \gamma){}^{14}_6\text{C}$ ${}^{14}_7\text{N}(n, p){}^{14}_6\text{C}$ ${}^{17}_8\text{O}(n, \alpha){}^{14}_6\text{C}$
${}^7_4\text{Be}$	53,3 dni	K	${}^{14}_7\text{N}(p, 2\alpha){}^7_4\text{Be}$ ${}^{16}_8\text{O}(p, {}^{10}_5\text{B}){}^7_4\text{Be}$ ${}^{14}_7\text{N}(n, {}^8_4\text{Li}){}^7_4\text{Be}$ ${}^{16}_8\text{O}(n, {}^{10}_5\text{Be}){}^7_4\text{Be}$
${}^{10}_4\text{Be}$	$1,39 \cdot 10^6$	β^-	${}^{14}_7\text{N}(n, p, \alpha){}^{10}_4\text{Be}$ ${}^{13}_6\text{O}(n, \alpha){}^{10}_4\text{Be}$
${}^{22}_{11}\text{Na}$	2,60	β^+, K, γ	${}^{19}_9\text{F}(\alpha, n){}^{22}_{11}\text{Na}$ ${}^{24}_{12}\text{Mg}(d, \alpha){}^{22}_{11}\text{Na}$ ${}^{23}_{11}\text{Na}(n, 2n){}^{22}_{11}\text{Na}$
${}^{26}_{13}\text{Al}$	$7,16 \cdot 10^5$	β^+	${}^{25}_{12}\text{Mg}(d, n){}^{26}_{13}\text{Al}$ ${}^{26}_{12}\text{Mg}(d, 2n){}^{26}_{13}\text{Al}$ ${}^{27}_{13}\text{Al}(p, 2n){}^{26}_{13}\text{Si}(\beta^+){}^{26}_{13}\text{Al}$
${}^{36}_{17}\text{Cl}$	$3,01 \cdot 10^5$	β^-, K	${}^{36}_{18}\text{Ar}(n, p){}^{36}_{17}\text{Cl}$ ${}^{35}_{17}\text{Mg}(n, \gamma){}^{36}_{17}\text{Cl}$ ${}^{40}_{20}\text{Ca}(\mu^-, \alpha){}^{36}_{17}\text{Cl}$ ${}^{40}_{20}\text{Ca}(\mu^-, 2p2n){}^{36}_{17}\text{Cl}$
${}^{37}_{18}\text{Ar}$	35,1 dni	K, γ	${}^{40}_{20}\text{Ca}(n, \alpha){}^{37}_{18}\text{Ar}$ ${}^{36}_{18}\text{Ar}(n, \gamma){}^{37}_{18}\text{Ar}$ ${}^{39}_{19}\text{K}(\mu^-, 2n){}^{37}_{18}\text{Ar}$ ${}^{41}_{19}\text{K}(\mu^-, 4n){}^{37}_{18}\text{Ar}$

Warto wspomnieć, że w wyniku opisanych powyżej procesów, do powierzchni Ziemi dociera jedynie 0,05% protonów pochodzących z promieniowania pierwotnego [6]. Wynika z tego, że wraz ze wzrostem wysokości nad poziomem morza natężenie promieniowania kosmicznego rośnie, co oznacza tym samym większą produkcję izotopów kosmogenicznych oraz większe dawki promieniowania jonizującego. Wzmoczoną produkcję izotopów kosmogenicznych wraz z wyższymi dawkami obserwujemy również na obszarach bliskich biegunom Ziemi, z uwagi na oddziaływanie cząstek naładowanych promieniowania kosmicznego z polem magnetycznym naszej planety.

4.2. Izotopy antropogeniczne

Atmosferyczne testy broni jądrowej – prowadzone od 1945 roku (z największą częstotliwością w latach 50. i 60.) głównie przez ZSRR, USA, a także przez Wielką Brytanię, Francję i Chiny. W zależności od mocy wybuchu, skażenie promieniotwórcze spowodowane

eksplozją może mieć charakter lokalny – kiedy wyemitowane substancje promieniotwórcze pozostają w troposferze, lub globalny - kiedy przechodzą do stratosfery, skąd mogą zostać przetransportowane w dowolne miejsce na kuli Ziemskiej. Przykładem eksplozji powodującej lokalne skażenie promieniotwórcze są bomby zrzucone w 1945 roku na Hiroshimę i Nagasaki o łącznej uwolnionej energii równoważnej wybuchowi ok 45 kt TNT, natomiast za główne źródło **globalnego opadu promieniotwórczego** uznaje się próbnie, atmosferyczne wybuchy jądrowe o łącznej uwolnionej energii równoważnej wybuchowi ok 550 Mt TNT, których do 1980 roku w różnych miejscach na Ziemi przeprowadzono ponad 450 [6]. Źródłem energii w broni jądrowej mogą być reakcje rozszczepienia ciężkich pierwiastków, np. U-235, Pu-239 (bomba atomowa) lub reakcje syntezy izotopów lekkich, takich jak H-2 i H-3 (bomba termojądrowa). W obu przypadkach podczas eksplozji emitowane jest promieniowanie jonizujące w postaci neutronów, promieniowania gamma oraz cząstek alfa i beta. Izotopy alfa i beta promieniotwórcze produkowane podczas reakcji jądrowych oraz aktywacji neutronowej lub stanowiącej elementy konstrukcyjne ładunku jądrowego, same następnie ulegają rozpadowi promieniotwórczemu emitując kolejne pokolenia sztucznych radionuklidów. W wyniku przeprowadzonych prób jądrowych do atmosfery wprowadzono izotopy promieniotwórcze o łącznej aktywności ok. $2,5 \cdot 10^{21}$ Bq [45], z czego sztuczne izotopy do dziś występujące w środowisku to m.in.: Cs-137, Sr-90, Am-241, Pu-239 oraz Pu-240 [4]. Z uwagi na geograficzne położenie poligonów jądrowych najbardziej skażone zostały tereny strefy umiarkowanych szerokości na półkuli północnej. Przykładowo, depozycja Pu-239 i Pu-240 w pasie o szerokościach między 40 a 50 stopniem na półkuli pn. była 1,35 razy większa niż średnia dla świata [4], a skażenie Sr-90 było 3,5 razy większe na półkuli pn. niż na półkuli pd. [6].

Oprócz sztucznych radionuklidów, podczas wybuchów termojądrowych produkowane były również izotopy H-3 oraz C-14, co spowodowało wzrost ich stężenia w atmosferze (patrz punkt 4.1 rozdział I). Z pośród wymienionych powyżej radionuklidów, ze względu na długi czas półrozpadu ($T_{1/2} = 5700 \text{ lat}$) oraz wysoką biodostępność największy wkład do średniej dawki obciążającej (ok. 50 %) otrzymywanej przez mieszkańców Ziemi w wyniku testów broni jądrowej ma C-14 [6]. Na skutek testów, średnia obciążająca dawka skuteczna dla mieszkańca półkuli pn. skumulowana dla lat 1945-2000 została oszacowana na 4,5 mSv [65].

Produkcja broni jądrowej – prowadzona głównie na terenie byłego ZSRR i USA. W wyniku produkcji i przetwarzania materiałów jądrowych do celów militarnych na terenie byłego ZSRR (Majak, Tomsk, Krasnojarsk) do środowiska uwolnione zostało ok $6 \cdot 10^{19}$ Bq substancji radioaktywnych, z czego aktywność wyemitowana do atmosfery przekroczyła 10^{17} Bq [6]. Skażone zostały przede wszystkim rzeka Tieczka (ok. 10^{17} Bq), jezioro Karaczaj ($4,4 \cdot 10^{18}$ Bq), rzeka Jenisej oraz rzeka Tom, do których zrzucane były odpady promieniotwórcze. Uwolnienia występowały nie tylko podczas rutynowej eksploatacji obiektów jądrowych, ale również podczas licznych wypadków, które miały miejsce na ich terenie. Przykładowo, w 1957 roku w ośrodku Majak z powodu niewystarczającego chłodzenia, eksplodował zbiornik z wysoko aktywnymi odpadami ciekłymi emitując cząstki promieniotwórcze na wysokość ok 2 km nad powierzchnią Ziemi. Wydarzenie to znane jest też jako katastrofa w Kisztymiu [10]. W wyniku tego zdarzenia około $74 \cdot 10^{15}$ Bq radioaktywnego materiału zostało rozproszonych w środowisku, doprowadzając do skażenia około 15000-23000 km² powierzchni. Podobny w swej naturze (ale na mniejszą skalę) wypadek miał miejsce w 1993 roku w kompleksie Tomsk-7, gdzie eksplodował pojemnik zawierający mieszaninę U-Pu. Równie poważne skażenia środowiska występowały w ośrodkach jądrowych zlokalizowanych na terenie USA. Pierwszym zakładem produkującym

pluton na skalę przemysłową był Hanford w stanie Washington. W latach 1944-1981 około 220 000 m³ ciekłych odpadów z przerobu paliwa jądrowego, o łącznej aktywności 11,8·10¹⁸ Bq, zostało tam wyprodukowane i zmagazynowane. Z tego nawet do 3800 m³ zostało wprowadzone do środowiska. W początkowym okresie eksploatacji, niektóre wysokoaktywne odpady i skażone ciecze były odprowadzane bezpośrednio do gruntu, zanieczyszczając teren o powierzchni około 500 km². W Oak Ridge w stanie Tennessee 160 000 m³ ciekłych odpadów zawierających produkty rozczepienia i pierwiastki transuranowe zostało bezpośrednio zrzucone do gruntu, powodując skażenie środowiska radioizotopami o łącznej aktywności 44·10¹² Bq [45].

Awarie i wypadki jądrowe – znanych jest 14 wypadków z udziałem samolotów transportujących broń jądrową, z czego najpoważniejszym zdarzeniem był wypadek z 1966 r., kiedy to bombowiec US Air Force B-52G przewożący cztery bomby termojądrowe o energii wybuchu równoważnej eksplozji 1,5 Mt TNT podczas tankowania paliwa w powietrzu zderzył się z latającą cysterną C-135 nad Palomares w południowej Hiszpanii. Zderzenie spowodowało wybuch samolotu i pożar na wysokości 8500 m. Trzy z przewożonych bomb spadły na ziemię, a jedna wpadła do oceanu. W dwóch bombach, które spadły na powierzchnię Ziemi nastąpiła detonacja konwencjonalnych materiałów wybuchowych, która spowodowała zapalenie plutonu (nie doszło do wybuchu jądrowego). Wynikiem pożaru było rozproszenie chmury cząstek Pu i U na powierzchni 2,3 km² w pobliżu Palomares. Drugim najpoważniejszym zarejestrowanym wypadkiem z udziałem samolotu była katastrofa bombowca B-52 przewożącego cztery bomby termojądrowe, który zapalił się i rozbił niedaleko Thule na Grenlandii w 1968 roku. Z powodu eksplozji i pożaru cząstki zawierające Pu i U zostały rozproszone na odległość kilku kilometrów. W obu przypadkach podjęto zakrojone na szeroką skalę prace dekontaminacyjne, ale część pierwotnych skażeń pozostała na miejscu [45].

Innym typem zdarzeń jądrowych, które spowodowały uwolnienia substancji radioaktywnych do środowiska były **katastrofy sztucznych satelitów zasilanych bateriami lub reaktorami jądrowymi**, które spłonęły podczas ponownego wejścia w atmosferę ziemską. W 1964 roku około 0,6·10¹⁵ Bq Pu-238 zostało uwolnione w atmosferze nad kanałem Mozambickim (Ocean Indyjski) na skutek zniszczenia amerykańskiego satelity telekomunikacyjnego z zasilaczem radioizotopowym SNAP-9A na pokładzie. Z kolei w 1978 r. radziecki satelita Kosmos 954 wyposażony w reaktor jądrowy po ponownym wejściu do atmosfery uległ spaleni, a jego pozostałości rozbiły się na terytoriach północno-zachodniej Kanady. Około jednej czwartej rdzenia reaktora zasilającego, głównie w postaci cząstek i fragmentów o różnych rozmiarach zostało odzyskane, jednak szacuje się, że reszta rdzenia w postaci drobnego pyłu pozostała w górnych warstwach atmosfery. Pył ten, razem z materiałem wprowadzonym do atmosfery wskutek testów broni jądrowej, wszedł w skład globalnego opadu promieniotwórczego [45]. Podobnie nad południowym Atlantykiem uległ katastrofie satelita Kosmos 1402 również wyposażony w reaktor jądrowy. Szczątków reaktora nie odnaleziono. Oprócz satelitów zasilane energią jądrową były także łodzie podwodne, z których część także uległa wypadkom. Wiadomo o 2 radzieckich i 6 amerykańskich uszkodzonych okrętach podwodnych, które spoczywają na dnie mórz i oceanów. W 1989 roku w morzu Barentsa ok 1500 m pod wodą zidentyfikowano łódź podwodną „Komsomolec”, zawierającą w transportowanych głowicach jądrowych 1,6·10¹³ Bq Pu oraz m.in. 3,1·10¹⁵ Bq Cs-137 i 2,8·10¹⁵ Bq Sr-90 w rdzeniu reaktora jądrowego. W 2000 roku również w morzu Barentsa zatonał z kolei nuklearny okręt podwodny Kursk [6].

W latach 60. Morze Barentsa oraz Morze Karskie w pobliżu archipelagu Nowej Ziemi były wykorzystane, jako składowiska odpadów radioaktywnych. Zatopiono tam tysiące pojemników z odpadami promieniotwórczymi, co najmniej 16 reaktorów jądrowych (z tego 6 z paliwem jądrowym) oraz cztery zbiorniki reaktora. Część źródeł promieniotwórczych do tej pory nie została zlokalizowana, np. zespoły paliwowe lodołamacza "Lenin", które zaginęły podczas transportu i do tej pory nie zostały odnalezione [6].

Kolejnym typem awarii jądrowych, które przyczyniły się do skażenia promieniotwórczego środowiska przyrodniczego były **awarie w elektrowniach jądrowych**. Największą i najbardziej brzemioną w skutki była awaria reaktora w elektrowni jądrowej w Czarnobylu. W wyniku źle zaprojektowanego i przeprowadzonego eksperymentu w nocy z 25 na 26 kwietnia 1986r. w jednym z 4 bloków energetycznych doszło do stopienia rdzenia, wybuchu, a następnie pożaru. Przyczyną katastrofy był nie tylko szereg błędów popełnionych przez załogę podczas wykonywania doświadczenia, ale również wyłączone w tym czasie systemy bezpieczeństwa oraz sama konstrukcja reaktora. W Czarnobylu, tak jak i w innych elektrowniach jądrowych w ZSRR wykorzystywane były reaktory typu RBMK, w których woda pełniła tylko rolę chłodziwa, moderatorem był natomiast grafit. Taka kombinacja powodowała dodatni termiczny współczynnik reaktywności (inaczej niż w reaktorach typu PWR czy BWR), tj. niekontrolowany wzrost mocy reaktora w przypadku utraty chłodziwa, co w konsekwencji może prowadzić do stopienia rdzenia jądrowego, eksplozji oraz uwolnienia substancji radioaktywnych. W wyniku awarii elektrowni jądrowej w Czarnobylu do środowiska uwolniona została aktywność promieniotwórcza rzędu 3-5% całkowitej aktywności wyemitowanej podczas testów broni jądrowej [4]. Wybrane wyemitowane podczas awarii radionuklidy wraz z aktywnościami przedstawia tabela 3.

Tabela 3. Wybrane radionuklidy uwolnione do środowiska w wyniku katastrofy w Czarnobylu [45].

Izotop	Czas połowicznego rozpadu	Oszacowane uwolnienie (PBq)
⁸⁵ Kr	10,72 lat	33
⁸⁹ Sr	50,5 dni	11,5
⁹⁰ Sr	29,12 lat	10
⁹⁵ Zr	64,0 dni	84
¹⁰³ Ru	39,3 dni	168
¹⁰⁶ Ru	368 dni	73
¹³¹ I	8,04 dni	1760
¹³³ Xe	5,25 dni	6500
¹³⁴ Cs	2,06 lat	47
¹³⁷ Cs	30 lat	85
¹⁴⁰ Ba	12,7 dni	240
¹⁴¹ Ce	32,5 dni	84
¹⁴⁴ Ce	284 dni	50
²³⁹ Np	2,36 dnia	400
²³⁸ Pu	87,74 lat	0,015
²³⁹ Pu	24065 lat	0,013
²⁴⁰ Pu	6537 lat	0,018

Eksploatacja obiektów jądrowych – obecnie uwolnienia substancji radioaktywnych podczas pracy obiektów jądrowych podlegają ciągłym pomiarom i kontroli bezpieczeństwa. Jeśli chodzi o **reaktory jądrowe** wykorzystywane do celów energetycznych to głównie uwalniane są gazy szlachetne, tryt, C-14 i jod w postaci gazowej. Mniej niż 0,001% całkowitej emitowanej aktywności stanowią cząstki. Dzięki stosowaniu coraz nowocześniejszych pasywnych oraz aktywnych systemów bezpieczeństwa dawki dla ludności zamieszkującej najbliższe tereny elektrowni jądrowej wynoszą od 0,1 μSv [63] do 50 μSv [64] rocznie i są pomijalnie małe w stosunku do naturalnego średniego rocznego tła promieniotwórczego (więcej o dawkach w punkcie 7 rozdziału I).

Innym typem obiektów jądrowych, w których dochodzi do uwolnień są **cywilne zakłady przeróbki paliwa jądrowego** (ośrodki militarne zostały opisane w podpunkcie „Produkcja broni jądrowej”). W Europie znajdują się trzy główne ośrodki zajmujące się przetwarzaniem paliwa jądrowego: Sellafield i Dounreay w Wielkiej Brytanii oraz La Hague we Francji. Obecnie, tak jak w przypadku elektrowni jądrowych, uwolnienia substancji radioaktywnych do środowiska z zakładów przerobu paliwa jądrowego są stale monitorowane, a ich wkład do całkowitej dawki pochodzącej od ekspozycji zewnętrznej otrzymywanej przez ludność zamieszkującą najbliższe okolice obiektów jądrowych w ciągu roku jest pomijalnie mały [66]. W przeszłości jednak, kiedy świadomość dotycząca ochrony radiologicznej dopiero się kształtowała, uwolnienia do środowiska nie były limitowane i stały się poważnym źródłem skażenia promieniotwórczego, którego skutki do dziś obserwowane są w środowisku. Przykładowo, w latach 1950-1992 zrzuty do Morza Irlandzkiego z Sellafield wynosiły około $1,3 \cdot 10^{15}$ Bq, z czego znaczną część stanowiły transuranowce w tym $0,72 \cdot 10^{15}$ Bq izotopów plutonu (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu). Dla porównania ośrodki w Dounreay i La Hague wyemitowały odpowiednio 0,5% i 1,5% izotopów alfa promieniotwórczych uwolnionych przez Sellafield [45]. Obecnie z powodu remobilizacji Pu zanieczyszczone osady w Morzu Irlandzkim działają jak wtórne źródła promieniotwórcze, co wynika z przechodzenia z czasem radionuklidów ze związanych, mało reaktywnych form fizykochemicznych do bardziej reaktywnych pod wpływem działania czynników środowiskowych. Przykładowo badania specjacyjne ścieków z La Hague wykazały, że choć emitowane z zakładu radionuklidy występują głównie, jako cząstki lub koloidy, to w kontakcie ze środowiskiem wodnym mogą zmieniać swoją postać, w tym przejść do mobilnej, biodostępnej formy [21]. Wiele innych badań również potwierdza, że sposób transferu radionuklidów do środowiska i ich przechodzenie przez kolejne piętra ekosystemu zależy w głównej mierze od formy fizykochemicznej, w jakiej występują (jony, molekuly, koloidy, cząstki), warunków środowiska (pH, zasolenie) oraz charakterystyki źródła emisji (warunki tlenowe, beztlenowe). Stąd wynika, że w długofalowym szacowaniu skutków skażeń promieniotwórczych środowiska kluczowym, oprócz znajomości rodzaju emitowanych radionuklidów, jest przeprowadzenie dla nich analizy specjacyjnej.

Przetwarzanie materiałów naturalnie występujących w przyrodzie – (z j. ang. Technologically Enhanced Natural Radioactive Materials - TENORM) powodujące skażenie środowiska naturalnego poprzez zwiększenie stężenia aktywności materiałów radioaktywnych występujących naturalnie w przyrodzie (przede wszystkim izotopów z naturalnych szeregów promieniotwórczych) oraz ich przestrzenną redystrybucję. Do działań w ramach TENORM zalicza się m.in.: wydobywanie i przetwarzanie rudy uranowej do celów energetyki jądrowej, wydobywanie i wykorzystanie paliw organicznych (głównie węgla, ropy naftowej i gazu ziemnego), wydobywanie i przetwarzanie minerałów (m.in. fosforu do produkcji nawozów

sztucznych), wytwarzanie materiałów budowlanych (np. cegieł, cementu, glazury), produkcję stali i żelaza oraz produkcję energii geotermalnej [67]. Największe skażenia promieniotwórcze pochodzą od produktów ubocznych oraz odpadów powstających podczas wydobywania ropy naftowej i gazu ziemnego. Głównym problemem w tym przemyśle jest powstawanie trudno rozpuszczalnego osadu $BaSO_4$, który wytrąca się na wewnętrznych ścianach rur odprowadzających wodę. Z uwagi na to, że bar jest analogiem chemicznym radu, może on zostać zastąpiony przez transportowane razem z wodą izotopy radu pochodzące z szeregów promieniotwórczych, tj. Ra-226 oraz Ra-228. W ten sposób tworzą się odpady radioaktywne zawierające oprócz izotopów radu również jego pochodne takie jak: Pb-210 oraz Po-210. Są one źródłem zarówno ekspozycji zewnętrznej (poprzez promieniowanie gamma) jak również ekspozycji wewnętrznej (poprzez promieniowanie alfa) [23]. W samych Stanach Zjednoczonych rocznie produkowane jest ok. 100 ton $BaSO_4$ na jeden szyb naftowy, przy czym średnie stężenie radu w osadzie oszacowano na 17,76 kBq/kg. Stężenie to może być znacznie wyższe (nawet do 15 MBq/kg) lub niższe w zależności od podłoża geologicznego w rejonie wydobywania [24]. W tabeli 4 przedstawiono zawartości Ra-228 i Ra-226 w odpadach pochodzących z przemysłu naftowego i gazowego w różnych krajach świata.

Tabela 4. Zawartość izotopów radu w odpadach z przemysłu naftowego i gazowego [22].

Miejsce wydobywania	Rodzaj odpadów	^{226}Ra [Bq/kg]	^{228}Ra [Bq/kg]
Australia	Stałe	21 000 - 250 000	48 000-300 000
Brazylia	Stałe	121 000 - 3 500 000	148 000 - 2 195 000
Egipt	Stałe	7541 - 143 262	35 460 - 368 654
Malezja	Stałe	114 300 - 187 750	130 120 - 206 630
Norwegia	Stałe	300 - 32 300	300 - 33 500
Tunezja	Stałe	4300 - 658 000	
Wielka Brytania	Stałe	1000 - 1 000 000	
USA	Stałe	15 400 - 3 700 000	
Australia	Ciekłe	25 000	30 000
Brazylia	Ciekłe	50 000 - 413 000	49 000 - 117 900
Egipt	Ciekłe	18 000	13 250
Malezja	Ciekłe	6 - 560	4 - 520
Norwegia	Ciekłe	100 - 4700	100 - 4600
Tunezja	Ciekłe	66 - 453	

5. Rozprzestrzenianie się izotopów promieniotwórczych w atmosferze

5.1. Aerozole atmosferyczne

Izotopy promieniotwórcze obecne w atmosferze mogą występować w jednej z trzech faz: stałej, ciekłej oraz gazowej. Zawieszone w powietrzu cząstki w stanie stałym lub ciekłym zawierające radioizotopy tworzą **promieniotwórcze aerozole atmosferyczne**. Aerozole zbudowane z cząstek w stanie ciekłym mogą występować, jako roztwory wodne lub jako cząstki stałe otoczone cienką powłóczką wodną. Zawartość wody w aerozolu nie przekracza 50% ich masy, co rozróżnia je od kropel wody [31]. Najważniejszym parametrem aerozoli wpływającym na ich transport oraz czas przebywania w atmosferze oprócz własności chemicznych jest ich rozmiar. Z uwagi na różnorodne kształty, wielkość oraz porowatą strukturę przyjmuje się, że aerozole mają kształt kulisty, a ich rozmiar określa się za pomocą średnicy efektywnej. Najczęściej stosowaną średnicą efektywną jest średnica zastępcza aerodynamiczna cząstki. Jest to średnica kulki o gęstości równej gęstości bezwzględnej badanej cząstki, mająca taką samą prędkość opadania w danym ośrodku, co rozważana cząstka.

Ze względu na rozmiar aerozole można podzielić na następujące grupy [32]:

- aerozole o średnicy $d < 0,1 \mu\text{m}$ zwane jądrami Aitkena lub klasą jąder Aitkena
- aerozole o średnicy od $1 \mu\text{m}$ do $2 \mu\text{m}$ zwane aerozolami dużymi lub klasą akumulacji
- aerozole o średnicy od $2 \mu\text{m}$ do $10 \mu\text{m}$ zwane aerozolami wielkimi

Aerozole o średnicy $d < 2 \mu\text{m}$ należą do klasy **aerozoli drobnoziarnistych**, natomiast aerozole o średnicy $d > 2 \mu\text{m}$ do klasy **aerozoli gruboziarnistych**. W powietrzu atmosferycznym do cząstek drobnoziarnistych zalicza się jądra Aitkena, dymy oraz opary, natomiast do cząstek gruboziarnistych mgły, pyły oraz popioły [32]. W badaniach nad zanieczyszczeniem powietrza często stosuje się również podział na cząstki o średnicy do $2,5 \mu\text{m}$ tzw. PM_{2,5} oraz cząstki o średnicy mniejszej niż $10 \mu\text{m}$ tzw. PM₁₀. Uznaje się, że aerozole o średnicy poniżej $10 \mu\text{m}$ są respirabilne, co oznacza że po zainhalowaniu mogą one dotrzeć bezpośrednio do pęcherzyków płucnych [51].

Ze względu na pochodzenie aerozole atmosferyczne można podzielić na następujące rodzaje [31, 68]:

- **aerozole wulkaniczne** - powstające w wyniku erupcji oraz ekshalacji wulkanów gazy, mgły i pyły
- **aerozole pustynne** - powstające w wyniku erozji eolicznej pyły mineralne
- **aerozole marygeniczne** - powstające w wyniku załamywania się fal na powierzchni wody aerozole soli morskiej

- **aerozole antropogeniczne** - powstające w wyniku działalności człowieka opary, dymy, mgły, pyły i popioły, emitowane głównie w procesach spalania

- **aerozole biologiczne** – powstające zarówno w procesach naturalnych jak również wynikających z działalności człowieka cząstki zawierające pyłki, nasiona oraz mikroorganizmy takie jak wirusy, bakterie, zarodniki i grzyby.

Aerozole atmosferyczne można również podzielić ze względu na sposób, w jaki dostają się do atmosfery na aerozole pierwotne oraz wtórne. **Aerozole pierwotne** to cząstki, które są emitowane do atmosfery, natomiast **aerozole wtórne** to cząstki, które powstają w atmosferze [31]. Tabela 5 przedstawia zestawienie wybranych rodzajów aerozoli atmosferycznych wraz z informacją o rocznych poziomach emisji tych aerozoli do atmosfery.

Tabela 5. Roczna emisja do atmosfery wybranych rodzajów aerozoli [31].

	Rodzaj aerozolu	Roczna emisja
Naturalne pierwotne	Łącznie	2880·10 ⁹ kg suchej masy na rok
	Aerozole mineralne	52,08 %
	Kryształki soli morskiej	45,14 %
	Pył wulkaniczny	1,04 %
	Pyłki roślinne	1,74 %
Naturalne wtórne	Łącznie	240·10 ⁹ kg suchej masy na rok
	Siarczany z gazów pochodzenia naturalnego	54,17 %
	Siarczany z wulkanicznego SO ₂	8,33 %
	Stałe cząstki organiczne z lotnych związków organicznych	25,00 %
	Azotany z NO _x	12,50 %
Antropogeniczne pierwotne	Łącznie	110·10 ⁹ kg suchej masy na rok
	Pyły przemysłowe (bez sadzy)	90,91 %
	Sadza	9,09 %
Antropogeniczne wtórne	Łącznie	340·10 ⁹ kg suchej masy na rok
	Siarczany z SO ₂	55,88 %
	Spalanie biomasy	26,47 %
	Azotany z NO _x	14,71 %
	Aerozole organiczne z antropogenicznych lotnych związków organicznych	2,94 %

Aerozole promieniotwórcze, ze względu na pochodzenie radionuklidów wchodzących w ich skład można podzielić na następujące grupy [32]:

- aerozole związane z izotopami kosmogenicznymi, głównie Be-7, Na-22, P-32, S-35

- aerozole związane z izotopami będącymi produktami rozpadu radonu oraz toronu m.in. Po-218, Pb-210, Po-210, Bi-210

- aerozole związane z izotopami emitowanymi podczas reakcji rozszczepienia takimi jak np. Sr-90, Cs-137, Ru-103, I-131

- aerozole związane z izotopami powstającymi podczas pracy wysokoenergetycznych akceleratorów np. Be-7, Na-22, Na-24, Mn-56

- aerozole związane z izotopami plutonu emitowanymi podczas testów broni jądrowej
- aerozole związane z izotopami pochodzącymi z wydobywania oraz spalania paliw kopalnych takimi jak U-238, Po-218, Pb-214 – Bi-214, Pb-210 – Po-210, K-40

Proces powstawania aerozoli, zwany też **nukleacją aerozoli** polega na **kondensacji** cząsteczek substancji ze stanu gazowego do stanu stałego lub ciekłego. Może przebiegać z udziałem jednej (proces jednoskładnikowy) lub wielu (proces wieloskładnikowy) substancji gazowych. Jeśli proces ten występuje w obecności obcych substancji w stanie stałym takich jak kryształki soli to jest to proces **nukleacji heterogenicznej**, w przeciwnym wypadku nazywany jest procesem **nukleacji homogenicznej**. Mniejsze cząstki aerozoli mogą również podlegać procesowi **koagulacji**, który polega na łączeniu się aerozoli w większe agregaty. Koagulacja aerozoli zachodzi w wyniku [31]:

- ruchów Browna (w zjawisku dyfuzji Browna lub zjawisku konwekcyjnego wzmocnienia dyfuzji Browna)
- ruchów turbulencyjnych
- opadania grawitacyjnego
- działania sił zewnętrznych (takich jak siły van der Waalsa, siły elektrostatyczne)

Oprócz procesów zwiększania liczby aerozoli w atmosferze równocześnie zachodzą procesy prowadzące do ich usuwania z atmosfery. Procesy te, zwane ogólnie depozycją można podzielić ze względu na sposób przebiegu na depozycję suchą oraz moką.

Depozycja sucha

Jest to usuwanie aerozoli z powietrza atmosferycznego w wyniku transportu do powierzchni ziemi zachodzącego bez udziału wody. Szybkość oraz sposób przebiegu tego procesu zależą do następujących czynników [31]:

- warunków meteorologicznych, takich jak nasłonecznienie, prędkość wiatru, temperatura, wilgotność względna, intensywność ruchów turbulencyjnych
- własności fizykochemicznych cząstek aerozoli, takich jak rozmiar, kształt, higroskopijność, ładunek elektryczny, reaktywność, rozpuszczalność
- własności podłoża, na którym następuje suche osiadanie, takich jak faktura (gładkość, szorstkość), wilgotność, reaktywność, rodzaj podłoża (skalne, roślinne).

Etapy przebiegu depozycji suchej składają się z następujących elementów [31]:

1. pionowy transport aerozoli ku powierzchni ziemi spowodowany **dyfuzją turbulencyjną**; dla cząstek o średnicach powyżej 1 μm zachodzi również proces grawitacyjnego osiadania, zwany **sedymencją**

2. transport aerozoli w warstwie laminarnej; dla cząstek o średnicach $< 0,1 \mu\text{m}$ za transport do powierzchni ziemi odpowiadają **ruchy Browna**, natomiast dla cząstek o średnicach $> 1 \mu\text{m}$ bezwładność oraz sedimentacja

3. osiadanie aerozoli na powierzchni Ziemi.

Szybkość procesu suchej depozycji, wyraża się następującym wzorem 36:

$$v_d = \frac{F}{C(z)} \left[\frac{\text{m}}{\text{s}} \right] \quad (36)$$

Gdzie:

F – strumień cząstek aerozoli skierowany ku powierzchni Ziemi

$C(z)$ – stężenie cząstek aerozoli w powietrzu na wysokości z nad powierzchnią Ziemi

W przypadku aerozoli związanych z izotopami promieniotwórczymi, strumień F określa się, jako aktywność radionuklidów zawartych w powietrzu przypadająca na jednostkę powierzchni, usuwana z atmosfery w jednostce czasu. Jednostką strumienia aktywności w jednostce czasu jest $[Bq/(m^2 \cdot s)]$. Miarą stężenia cząstek aerozoli nad powierzchnią Ziemi jest z kolei stężenie aktywności izotopów promieniotwórczych w powietrzu mierzone w $[Bq/m^3]$.

Dla aerozoli atmosferycznych szybkość depozycji suchej można wyznaczyć również ze wzoru 37 [32]:

$$v_d = \frac{d_p^2}{18\eta} (\rho_p - \rho_{air}) g \left[\frac{\text{cm}}{\text{s}} \right] \quad (37)$$

Gdzie:

d_p – średnica aerozolu $[cm]$

ρ_p – gęstość aerozolu $\left[\frac{g}{cm^3} \right]$

ρ_{air} – gęstość powietrza $\left[\frac{g}{cm^3} \right]$

η – lepkość powietrza $\left[\frac{g}{cm \cdot s} \right]$

g – ziemskie przyspieszenie grawitacyjne (wartość bezwzględna) $\left[\frac{cm}{s^2} \right]$

Z wzoru 37 wynika, że największy wpływ na tempo procesu suchego osiadania ma rozmiar usuwanych z powietrza cząstek. Tabela 6 przedstawia przykładowe szybkości opadania dla aerozoli atmosferycznych związanymi z Be-7, Pb-210 oraz Cs-137.

Tabela 6. Szybkość depozycji suchej v_d [cm/s] dla wybranych aerozoli atmosferycznych [32].

^{7}Be	^{210}Pb	^{137}Cs	Miejsce pomiaru
0,5 (0,3-0,8)	-	3,4 (1,3-6,3)	Grecja
1,2 (0,5-2,1)	-	-	Wielka Brytania
0,5 (0,2-3,4)	-	-	Norwegia
0,1-0,6	-	-	Wielka Brytania
0,8	-	-	USA
1,0	-	-	USA
2,8	0,95	-	USA
1,66	-	-	USA
1,3	0,7	-	USA
1,5	-	1,46	Niemcy
1,6	1,1	-	USA

Depozycja mokra

Jest to usuwanie aerozoli z powietrza atmosferycznego w wyniku transportu do powierzchni Ziemi zachodzącego z udziałem wody (tzw. wymywanie aerozoli z atmosfery). Zjawisko to zachodzi w wyniku przechwytywania cząsteczek aerozoli przez zawieszone w powietrzu hydrometeory, tj. krople wody lub kryształki lodu wchodzące w skład chmur oraz opadów atmosferycznych. W przeciwieństwie do depozycji suchej, która zachodzi przy powierzchni Ziemi, wymywanie aerozoli może zachodzić na różnych wysokościach nad powierzchnią Ziemi, w tym przede wszystkim na wysokościach, na których znajdują się podstawy chmur. Przebieg depozycji mokrej w dużej mierze zależy od procesu powstania chmur oraz przemian zachodzących w chmurach prowadzących do powstania opadów [31].

Etapy depozycji mokrej składają się z następujących elementów:

1. Mieszanie się aerozoli atmosferycznych z kroplami wody lub kryształkami lodu
2. „Dołączanie” się cząstek aerozoli do kropeł wody lub kryształków lodu
3. Transport aerozoli wraz opadami atmosferycznymi na powierzchnię Ziemi

Wyróżnia się dwa główne procesy wymywania aerozoli z atmosfery [31]:

- **wymywanie w chmurach** – aerozole atmosferyczne pełnią bardzo ważną funkcję w procesie powstawania chmur będąc tzw. **jądrami kondensacji**. Dzięki nim już przy przesyleniu pary wodnej rzędu 1% dochodzi do zapoczątkowania tworzenia kropeł chmury. Wskaźnik wymywania aerozoli będącymi jądrami kondensacji (z j. ang. scavenging ratio) opisuje wzór 38:

$$F_i = \frac{C_{i,0} - C_{i,int}}{C_{i,0}} \quad (38)$$

Gdzie:

F_i – masowy wskaźnik wymywania aerozoli tworzących jądra kondensacji

$C_{i,0}$ – stężenie i – tego aerozolu w powietrzu przed powstaniem chmury

$C_{i,int}$ – stężenie i – tego aerozolu w chmurze

Oprócz jąder kondensacji w chmurze obecne są również aerozole, które nie zostały uaktywnione. Są one wymywane w procesie koagulacji, poprzez zderzanie się z kroplami wody w chmurze. Za zderzenia te odpowiadają w głównej mierze ruchy Browna.

- **wymywanie przez krople deszczu** – podobnie jak w przypadku usuwania nieaktywnych aerozoli z przestrzeni chmurowej polega na koagulacji tj. łączeniu się aerozoli z kroplami wody. Źródłem tego procesu mogą być ruchy Browna, ruchy turbulencyjne, działanie siły grawitacji, siły hydrodynamicznej oraz wiele innych. Stopień intensywności wymywania aerozoli przez krople wody zależy od bardzo wielu czynników takich jak: rozmiar aerozolu, rozmiar kropli wody, prędkość końcowa aerozolu, prędkość końcowa kropli wody, lepkość wody, lepkość powietrza, gęstość powietrza oraz współczynnik dyfuzji aerozolu. Oprócz deszczu, wychwytywanie aerozoli z powietrza może również zachodzić dla innych opadów atmosferycznych takich jak śnieg, grad, mżawka, czy nawet mgła [9].

Zjawisko mokrej depozycji, składające się z wymywania aerozoli w chmurach oraz przez opady atmosferyczne można opisać wzorem 39 [32]:

$$\chi_t = \chi_0 e^{-\Lambda_p t} \quad (39)$$

Gdzie:

χ_t – stężenie aerozoli w powietrzu w chwili t

χ_0 – stężenie aerozoli w powietrzu w chwili $t = 0$

Λ_p – szybkość wymywania aerozoli w chmurach oraz przez opady atmosferyczne $\left[\frac{1}{s} \right]$

Szybkość wymywania aerozoli przez opady atmosferyczne λ_p wyraża się następująco (wzór 40) [32]:

$$\lambda_p = \frac{Wp}{\rho H} \quad (40)$$

Gdzie:

p – strumień opadów $\left[\frac{kg}{m^2 s} \right]$

H – efektywna wysokość słupa powietrza, w którym następuje wymywanie [m]

ρ – gęstość powietrza $\left[\frac{kg}{m^3} \right]$

W – współczynnik wymywania [j. bezw.]

Dla aerozoli atmosferycznych zawierających izotopy promieniotwórcze **współczynnik wymywania W** definiuje się następująco (wzór 41) [32]:

$$W = \frac{C_{rain}}{C_{air}} \quad [j. bezw.] \quad (41)$$

Gdzie:

C_{rain} – stężenie aktywności aerozoli w opadach $[\frac{Bq}{m^3}]$

C_{air} – stężenie aktywności aerozoli w powietrzu $[\frac{Bq}{m^3}]$

Inną wielkością stosowaną do opisu procesu wymywania aerozoli jest **czas retencji** τ_p , będący odwrotnością szybkości wymywania (wzór 42) [32]:

$$\tau_p = \frac{1}{\lambda_p} [s] \quad (42)$$

Poniżej (tabela 7) zestawienie przykładowych wartości współczynników wymywania dla aerozoli promieniotwórczych zawierających Be-7, Cs-137 oraz Pb-210.

Tabela 7. Współczynnik wymywania dla wybranych aerozoli atmosferycznych W [32].

⁷ Be	²¹⁰ Pb	¹³⁷ Cs	Miejsce pomiaru
144 (103-175)	-	1295 (284-3810)	Grecja
-	-	560	Wielka Brytania
-	-	680 (600-800)	Wielka Brytania
-	-	730	Wielka Brytania
370 (370-375)	215 (203-228)	-	USA
948	637	-	USA
-	-	230-6600	Wielka Brytania
-	430	230	Wielka Brytania
-	530	-	Wielka Brytania
-	-	700	Wielka Brytania

Procesem odwrotnym do depozycji aerozoli jest ich unoszenie z powierzchni Ziemi, zwane zjawiskiem **resuspensji**. Przyczynia się ono zarówno do rozprzestrzenia się aerozoli w środowisku jak również do utrzymania stałej koncentracji aerozoli w powietrzu. Zależy ono od wielu czynników takich jak: rodzaj aerozoli, prędkość wiatru, rodzaj i struktura powierzchni, czas który upłynął od depozycji. Uważa się, że proces resuspensji cząstek aerozoli atmosferycznych wnosi największy wkład do dawek otrzymywanych przez organizmy żywe w wyniku wchłonięcia substancji radioaktywnych [32]. Dla aerozoli promieniotwórczych intensywność procesu resuspensji można wyznaczyć korzystając ze współczynnika resuspensji zadanego wzorem 43:

$$k_r = \frac{C_{air}}{D_S} \left[\frac{1}{m}\right] \quad (43)$$

Gdzie:

C_{air} – stężenie aktywności izotopu w powietrzu $[\frac{Bq}{m^3}]$

D_S – depozycja aktywności izotopu na powierzchni ziemi $[\frac{Bq}{m^2}]$

Współczynnik ten może być stosowany tylko dla dużych powierzchni, dla których rozkład depozycji jest równomierny. W innym przypadku można wykorzystać wskaźnik, określający szybkość resuspensji, zdefiniowany wzorem 44:

$$\Lambda_r = \frac{R}{D_S} \left[\frac{1}{s} \right] \quad (44)$$

Gdzie:

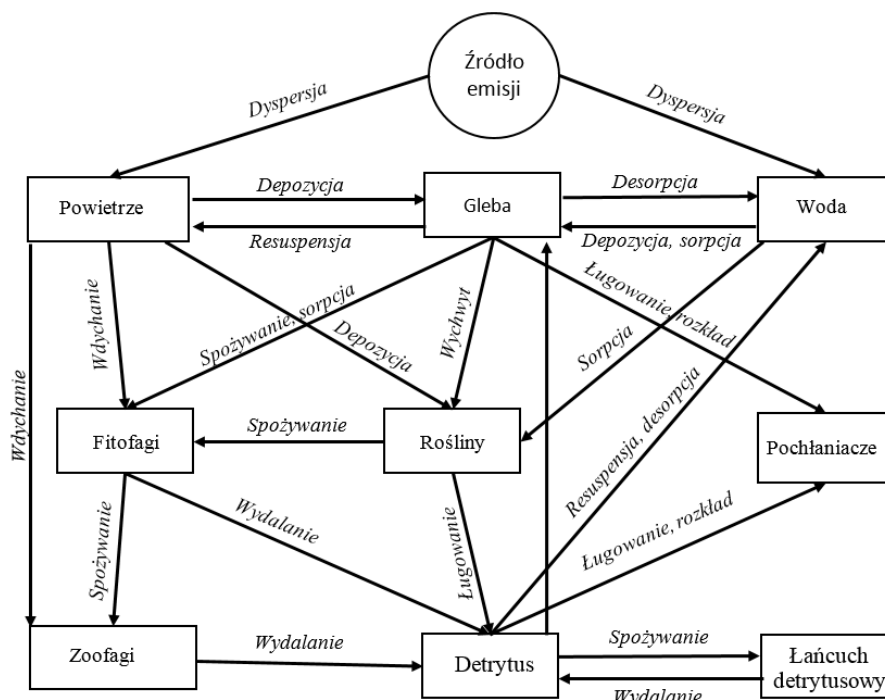
R – pionowy strumień depozycji aktywności izotopu $\left[\frac{Bq}{m^2 s} \right]$

D_S – depozycja aktywności izotopu na powierzchni Ziemi $\left[\frac{Bq}{m^2} \right]$

Podsumowując, rozprzestrzenianie się izotopów promieniotwórczych w atmosferze jest bardzo skomplikowanym zjawiskiem zależnym od wielu czynników, z których najważniejsze to [31]:

- różnorodność źródeł skażeń promieniotwórczych
- różnorodność form fizykochemicznych transportowanych radionuklidów
- występowanie procesów dyfuzji oraz kierunkowego transportu radionuklidów w atmosferze
- zjawisko wymywania izotopów z atmosfery w chmurach oraz wraz z opadami atmosferycznymi
- zjawisko usuwania radioaktywnych aerozoli atmosferycznych w skutek suchego osiadania
- zjawisko reemisji do atmosfery w wyniku procesu resuspensji
- warunki meteorologiczne
- ukształtowanie terenu

Transport izotopów promieniotwórczych w atmosferze oraz depozycja izotopów na powierzchnię Ziemi stanowi bardzo ważny, ale nie jedyny element obiegu radionuklidów w środowisku. Częścią obiegu są również m.in. rośliny, zwierzęta, mikroorganizmy, wody powierzchniowe oraz gleba. Złożoność tego systemu oraz mnogość procesów transportu, jakim podlegają izotopy promieniotwórcze przechodząc przez poszczególne elementy środowiska przyrodniczego przedstawia rysunek 2.

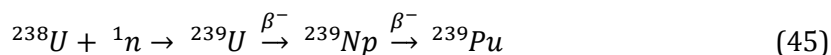


Rysunek 2. Uproszczony schemat obiegu radioizotopów w środowisku [46].

6. Izotopy będące przedmiotem badań

6.1. Izotopy plutonu

Pluton jest pierwiastkiem radioaktywnym o bardzo wysokiej radiotoksyczności posiadającym 20 znanych izotopów o czasach półrozpadu wynoszących od 1,1 s dla Pu-228 do $8,08 \cdot 10^7$ lat dla Pu-244. Najważniejszym izotopem plutonu jest Pu-239, wykorzystywany zarówno w energetyce jądrowej, gdzie w wyniku jego rozszczepienia uzyskiwana jest 1/3 całkowitej otrzymywanej energii jak i przy produkcji broni jądrowej. W ilościach masowych produkowany jest w reaktorze jądrowym podczas bombardowania U-238 powolnymi neutronami. Poniżej schemat reakcji jądrowej, w której jest produkowany Pu-239 (wzór 45):



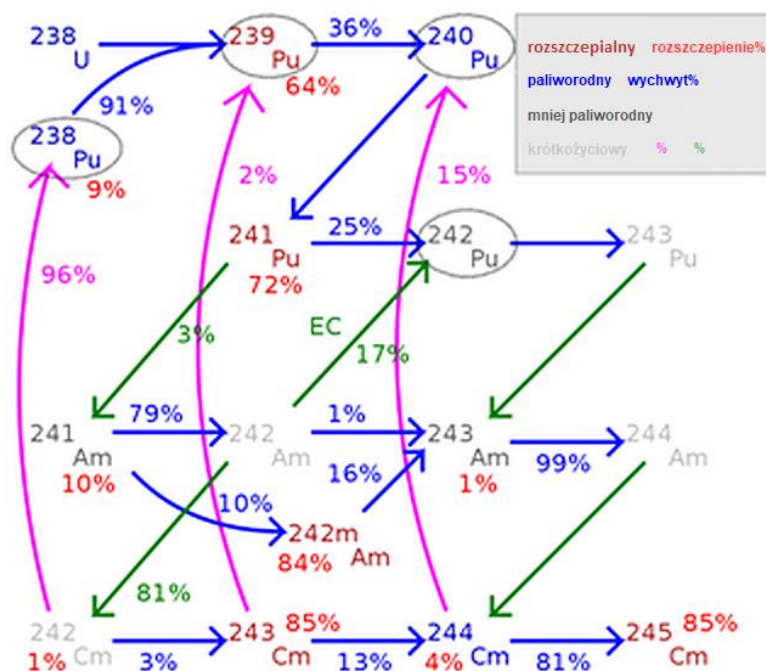
Drugim ważnym z punktu widzenia zastosowań praktycznych jest izotop Pu-238, emitowany w wyniku następującej reakcji jądrowej (wzór 46):



Pu-238 głównie wykorzystywany jest, jako źródło zasilania w energię elektryczną w sztucznych satelitach. Używany był w takich misjach jak Voyager, Cassini, Apollo 14, Galileo. Pu-238 jest

bardzo wydajnym paliwem, ponieważ z 1 kg tego izotopu można otrzymać $22 \cdot 10^6$ kWh. Ze względu na rodzaj emitowanego promieniowania (α oraz niskoenergetyczne γ) może być łatwo osłonięty. Poza tym Pu-238 przez długi czas wykorzystywany był w bateriach jądrowych stosowanych w rozrusznikach serca. Z uwagi na problem z odpadami promieniotwórczymi, obecnie stosuje się raczej baterie litowe [4].

W niniejszej pracy przedmiotem analizy były izotopy Pu-238, Pu-239 i Pu-240. Izotop Pu-240 powstaje w wyniku wychwytu neutronu (pochodzącego np. z reakcji rozszczepienia) przez Pu-239. Podobnie Pu-240 po absorpcji neutronu ulega rozszczepieniu lub przechodzi w Pu-241. Ponieważ w rozpadzie Pu-240 emitowane są cząstki alfa o bardzo zbliżonej energii do energii cząstek alfa emitowanych podczas rozpadu Pu-239, nie udaje się ich rozseparować w widmach alfa-spektrometrycznych. W związku z tym przyjęło się, że wynikiem analizy alfa spektrometrycznej jest łączna aktywność ^{239}Pu i ^{240}Pu . Dane charakteryzujące wykorzystane w pracy izotopy plutonu oraz schemat procesów, w których powstają przedstawione są odpowiednio w tabeli 8 oraz na rysunku 3.



Rysunek 3. Procesy produkcji izotopów plutonu w paliwie jądrowym [47].

Tabela 8. Charakterystyka rozpadów wybranych izotopów plutonu [4].

Liczba masowa A	Czas połowicznego rozpadu $T_{1/2}$ [lata]	Typ rozpadu	Energia emitowanego promieniowania [MeV]	Prawdopodobieństwo emisji [%]
238	87,74	α	5,499	70,9
		α	5,457	29
239	24110	α	5,155	73,3
		α	5,143	15,1
240	6563	α	5,168	72,8
		α	5,123	27,1
242	$3 \cdot 10^5$	α	4,901	74
		α	4,857	26

Aerozole atmosferyczne zawierające izotopy plutonu formowane są w następujących procesach [32]:

- utlenianie lub parowanie metalicznego plutonu
- utlenienie lub parowanie napromieniowanego uranu lub dwutlenku uranu
- dyspersja kropeł roztworów wodnych lub zawiesin zawierających pluton
- resuspensja cząsteczek zawierających pluton ze skażonej powierzchni

Do atmosfery izotopy plutonu dostały się głównie w wyniku testów atmosferycznych broni jądrowej, awarii satelitów z zasilaczami jądrowymi, oraz wycieków z instalacji jądrowych. Dokładnie procesy emisji plutonu oraz innych izotopów antropogenicznych do środowiska opisano w punkcie 4.1 rozdziału I. Oprócz źródeł antropogenicznych, w przyrodzie znajdują się również naturalne źródła plutonu. Należą do nich: produkcja plutonu podczas wybuchów supernowych mających miejsce przed powstaniem naszego Układu Słonecznego oraz naturalne reaktory jądrowe. Szacuje się, że zawartość naturalnego plutonu w skorupie ziemskiej wynosi kilkanaście kilogramów [4].

Obecnie na terenie Polski nie ma żadnych istotnych źródeł plutonu, więc jego obecność w atmosferze może wynikać głównie z resuspensji aerozoli zawierających pluton pochodzących ze źródeł takich jak awaria elektrowni jądrowej w Czarnobylu czy globalny opad promieniotwórczy. Swój udział mogą mieć też źródła odległe, takie jak np. uwolnienia z zakładów przeróbki paliwa jądrowego (np. La Hague we Francji). Pomiar prowadzone do tej pory na terenie IFJ PAN w latach 1990-2007 wykazały, że średnie stężenie aktywności izotopów Pu-238 oraz Pu-239+240 w kwartalnych próbkach aerozoli z przygruntowej warstwy powietrza wynoszą odpowiednio 1,2 nBq/m³ oraz 4,3 nBq/m³ [42]. Z kolei w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego depozycja aktywności izotopów Pu-238 oraz Pu-239+240 wynosi 0,05 mBq/m² oraz 0,3 mBq/m² [43].

Jedną z metod pomocnych w ocenie pochodzenia izotopów plutonu w badanych próbkach jest wyznaczenie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 oraz Cs-137/Pu-238+240. Stosunki te przyjmują różne wartości w zależności od źródła emisji plutonu do środowiska, co pokazuje tabela 9.

Tabela 9. Stosunki aktywności Pu-238/Pu-239+240 i Pu-239+240/Cs-137 charakterystyczne dla wybranych źródeł skażeń izotopami plutonu [75,76,77].

Źródło skażenia izotopami plutonu	A Pu-238/A Pu-239+240	A Cs-137/A Pu-239+240
Materiał konstrukcyjny broni jądrowej	0,014	
Opad globalny + SNAP 9A (półkula północna)	0,03	38-55
Wypalone paliwo jądrowe	0,18 - > 1,8	
Sellafield	0,18 - 0,21	
La Hague	0,26 - 0,34	
Czarnobyl	0,55 - 0,6	100 ¹ - 1000 ²

¹ Próbki zebrane w bliskiej odległości od elektrowni jądrowej(EJ) w Czarnobylu (w obrębie 30 km)

²Próbki zebrane w dużej odległości od Czarnobyla (na terenie Niemiec niedaleko Monachium)

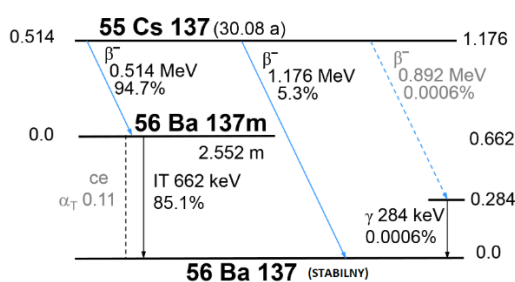
W przypadku stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 charakterystycznego dla wypalonego paliwa jądrowego (pochodzącego np. z awarii EJ w Czarnobylu) wartości przedstawione w tabeli 9 stanowią informację jedynie o rzędzie wielkości badanego stosunku.

Dotychczasowe badania wskazują, że pochodzenie plutonu obecnego w powietrzu nad południową Polską (pochodzącego z resuspensji) ma charakter mieszany, z czego główne składowe stanowią globalny opad promieniotwórczy, a także w mniejszym stopniu katastrofa w Czarnobylu [42].

6.2. Cs-137

Cs-137 obok Cs-134 oraz Cs-135 jest jednym z trzech najważniejszych antropogenicznych radioizotopów cezu występujących obecnie w przyrodzie. Produkowany jest podczas reakcji rozszczepienia zachodzących w reaktorze jądrowym oraz w bombach jądrowych. Może być produkowany bezpośrednio podczas reakcji jądrowej lub jako produkt rozpadu Xe-137. W przypadku pierwszego kanału produkcji izotop Cs-137 występuje na ogół w postaci aerozoli gruboziarnistych, natomiast w przypadku drugiego kanału, jako aerozole z klasy akumulacji [32]. Obecność Cs-137 w atmosferze jest wynikiem uwolnień, do których dochodzi podczas eksploatacji obiektów jądrowych, awarii obiektów jądrowych oraz testów z bronią jądrową. Obecnie najważniejszym źródłem Cs-137 w powietrzu jest globalny opad promieniotwórczy, a wzrost jego zawartości w powietrzu wynika głównie z zachodzących procesów resuspensji [38].

Do celów praktycznych Cs-137 wydobywa się z wypalonego paliwa jądrowego i wykorzystuje w szerokim zakresie w nauce, technice i medycynie. Z uwagi na relatywnie długi czas połowicznego rozpadu (30,07 lat), emisję wysokoenergetycznych kwantów gamma oraz chemiczne własności (cezu jest analogiem potasu) ma on znaczący wpływ na dawki efektywne otrzymywane w wyniku ekspozycji zewnętrznej przez organizmy żywe [35]. Schemat rozpadu izotopu Cs-137 przedstawia rysunek 4.



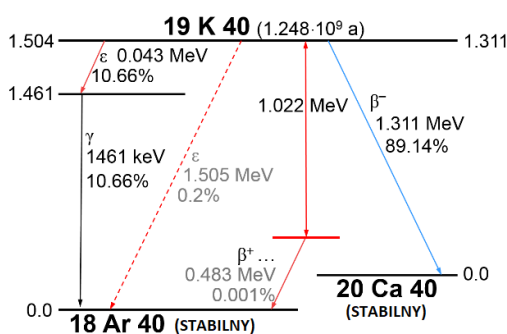
Rysunek 4. Schemat rozpadu izotopu Cs-137 [85].

W Polsce najwyższe stężenia Cs-137 w powietrzu rejestrowane były po awarii elektrowni jądrowej w Czarnobylu. W Warszawie w 1986 roku maksymalne stężenie Cs-137 w przygruntowej warstwie powietrza zmierzone w próbkach miesięcznych osiągnęło wartość 18,6 Bq/m³, przy czym średnia z całego roku wynosiła 51 mBq/m³ [36]. Dla porównania przed katastrofą średnie stężenie aktywności Cs-137 w powietrzu było na poziomie kilkudziesięciu μBq/m³. Na terenie Polski skażenie promieniotwórcze Cs-137 oraz innymi izotopami wyemitowanymi do atmosfery podczas katastrofy w Czarnobylu było bardzo nierównomierne przede wszystkim z uwagi na lokalne opady deszczu, które znacząco podwyższały skażenie promieniotwórcze na niektórych obszarach, sięgając nawet 100 kBq/m² na małych obszarach Śląska Opolskiego [118]. W 1986 roku depozycja aktywności Cs-137 w Polsce w rocznym

sumarycznym opadzie całkowitym wynosiła 1511 Bq/m² [36]. Dla porównania obecnie średnia depozycja Cs-137 w całkowitym miesięcznym opadzie atmosferycznym na przykładzie Krakowa wynosi ok. 0,04 Bq/m² [39].

6.3. K-40

Izotop pochodzenia ziemskiego. Jest jednym z trzech naturalnie występujących w przyrodzie izotopów potasu i jedynym naturalnie promieniotwórczym. Z uwagi na bardzo długi czas połowicznego rozpadu wynoszący $1,28 \cdot 10^9$ lat oraz powszechność występowania jest jednym z najważniejszych naturalnych emiterów promieniowania gamma w środowisku. Naturalna aktywność właściwa K-40 wynosi 31 Bq/g. Potas-40 rozpada się dwoma kanałami: poprzez emisję elektronu oraz przez wychwyt elektronu, a następnie emisję pozytonu. Szczegółowo proces rozpadu przedstawia rysunek 5.



Rysunek 5. Schemat rozpadu izotopu K-40 [85].

Potas zajmuje 17 miejsce pod względem abundancji w skorupie Ziemskiej oraz jest 6 najczęściej występującym pierwiastkiem w oceanach. Wchodzi w skład takich minerałów jak biotyty, klinoptylolity, leucyty oraz muskowity. Dystrybucja potasu w skorupie ziemskiej waha się od 0,1% w skałach wapiennych do 4% w skałach granitowych, natomiast średnie światowe stężenie aktywności K-40 wynosi ok. 370 Bq/kg. Stężenie to przyjmuje różne wartości w zależności od rodzaju skał, położenia geograficznego, warunków meteorologicznych oraz od tego czy na danym terenie występuje aktywność agrarna [4]. Wykorzystywane w rolnictwie na szeroką skalę nawozy sztuczne wzbogacone w potas, powodują wzrost stężenia aktywności tego radionuklidu nawet o kilkaset procent. Wzbogacanie gleby w potas wynika z tego, że jest to jeden z najważniejszych składników pokarmowych roślin. Wpływa na odporność roślin na suszę, choroby oraz przymrozki, a także bierze udział w transformacji azotu mineralnego do białek [37]. Oprócz tego potas pełni bardzo ważną funkcję w przypadku skażenia gleby radioaktywnym cezem. Z uwagi na to, że jest on chemicznym analogiem cezu, występując w glebie w dużej ilości działa blokująco na wchłanianie cezu przez rośliny.

Potas jest jednym z trzech najważniejszych pierwiastków występujących w organizmie człowieka i ma znaczący udział w zachowaniu prawidłowej gospodarki wodno-elektrolitowej. Aktywność potasu w ciele człowieka różni się w zależności od płci, wieku oraz masy i np. dla mężczyzny rasy kaukaskiej o masie 70 kg wynosi ok. 4400 Bq [4]. Do organizmu człowieka potas (w tym K-40) dostaje się drogą pokarmową oraz oddechową.

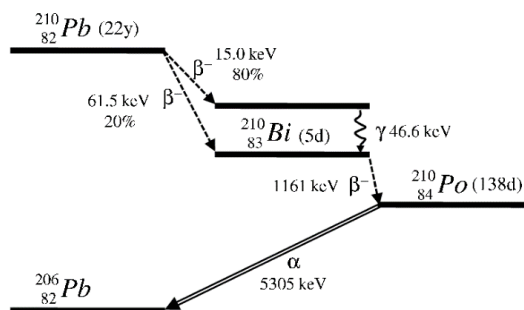
Obecność izotopu K-40 w atmosferze spowodowana jest procesem podnoszenia cząstek zawierających potas z powierzchni ziemi tj. ich resuspensją. Potas-40 zawarty w aerozolach atmosferycznych, pochodzi przede wszystkim z opisanych powyżej źródeł naturalnych, ale swój wkład w zwiększenie jego zawartości ma też proces spalania węgla i biopaliw stałych. W Krakowie średnie stężenie izotopu K-40 w przygruntowej warstwie powietrza wynosi ok 15 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ [38] natomiast depozycja aktywności w miesięcznym całkowitym opadzie atmosferycznym ok. 1 Bq/m^2 [39].

6.4. Pb-210

Izotop będący elementem naturalnego szeregu promieniotwórczego uranowo-radowego. Powstaje w wyniku rozpadu Po-214 i jest najdłużej żyjącym izotopem pochodnym radonu (czas półrozpadu Pb-210 wynosi 22,3 lat). Powstaje zarówno w geosferze, hydrosferze jak i atmosferze. W powietrzu tworzy aerozole z klasy akumulacji, które powstają w dolnej warstwie troposfery skąd następnie ulegają depozycji na powierzchnię Ziemi. Aerozole zawierające Pb-210 doskonale nadają się do badań transportu kontynentalnych mas powietrza, z uwagi na to, że ponad 99% radonu emitowane jest do atmosfery z obszarów lądowych, a tylko niecały 1 % ze zbiorników wodnych [40]. Ponadto Pb-210 wraz z innymi izotopami pochodnymi radonu jest wykorzystywany do badania szybkości depozycji aerozoli atmosferycznych, czasu retencji aerozoli, współczynników wymywania, źródeł pyłów kontynentalnych w masach powietrza oraz procesów przyłączania cząstek metali do aerozoli [61,86].

Stężenie aktywności ołowiu-210 w przyziemnej warstwie atmosfery waha się w zależności od warunków meteorologicznych, pory roku, stopnia emanacji radonu na danym terenie, wysokości atmosferycznej warstwy granicznej oraz wilgotności gleby od kilku dziesiątych mBq/m^3 do kilku mBq/m^3 . Dla przykładu stężenie aktywności Pb-210 mierzone tygodniowo w Detroit przez 18 miesięcy wynosiło od 0,3 do 4,22 mBq/m^3 , w 12 letnich pomiarach próbek miesięcznych w Belgradzie od 0,30 do 3,17 mBq/m^3 , w południowej Hiszpanii od 0,28 do 0,92 mBq/m^3 [41], natomiast w Łodzi w latach 2008-2009 od 0,167 do 1,847 mBq/m^3 [119].

Schemat rozpadu Pb-210 przedstawia poniższy rysunek 6.

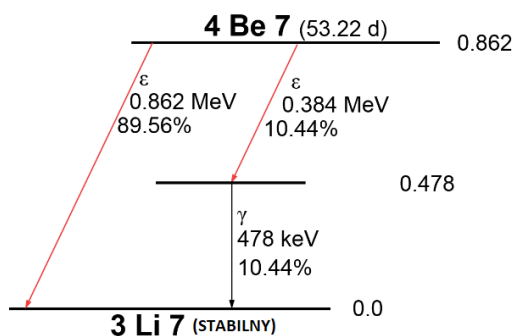


Rysunek 6. Schemat rozpadu izotopu Pb-210 [85].

6.5. Be-7

Beryl-7 to izotop pochodzenia kosmogenicznego o czasie półrozpadu równym 53,3 dni. Powstaje w atmosferze w wyniku reakcji spalacji lekkich jąder takich jak jądra węgla, azotu czy tlenu. Dokładny opis reakcji jądrowych prowadzących do powstania Be-7 zawiera tabela 2. Be-7 produkowany jest w górnych warstwach atmosfery, z czego w ok. 70 % w stratosferze [33], skąd zostaje transportowany na powierzchnię Ziemi głównie w postaci aerozoli o średnicach aerodynamicznych od 0,07 μm do 2 μm , tj. aerozoli z klasy akumulacji [32]. Proces przyłączania się Be-7 do aerozoli atmosferycznych odbywa się poprzez koagulację, która zachodzi podczas przechodzenia berylu ze stratosfery do niższych warstw atmosferycznych. Stężenie aktywności Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza waha się 0,08-30 mBq/m³ i zależy od wielu czynników takich jak: aktywność słoneczna, warunki meteorologiczne (w szczególności opady atmosferyczne, temperatura i wilgotność powietrza), szerokość geograficzna oraz pora roku [13, 48]. Średni czas przebywania aerozoli zawierających Be-7 w atmosferze wg różnych badań wynosi od 2,6 dnia [49] do 8,9 dnia [50], przy czym depozycja na powierzchnię Ziemi zachodzi głównie w wyniku grawitacyjnego opadania oraz wraz z opadami atmosferycznymi [13]. Ze względu na swoje własności Be-7 może być wykorzystywany, jako znacznik w badaniach różnych składowych procesów transportu aerozoli w atmosferze, takich jak prędkości depozycji aerozoli, czasy retencji aerozoli w troposferze [61], czy wychwyty aerozoli przez roślinność, jak również w badaniach innych procesów środowiskowych takich jak erozja czy sedimentacja.

Be-7 rozpada się w wyniku wychwyty elektronu do wzbudzonego jądra Li-7, które następnie odzwbudza się poprzez emisję kwantu gamma o energii 477,6 keV. Schemat rozpadu tego izotopu przedstawia rysunek 7.

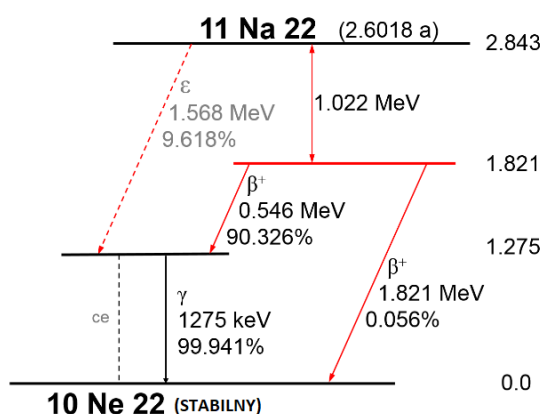


Rysunek 7. Schemat rozpadu izotopu Be-7 [85].

6.6. Na-22

Izotop pochodzenia kosmogenicznego o czasie półrozpadu równym 2,6 lat. Reakcje jądrowe, w jakich jest produkowany zawarto w tabeli 2. Oprócz naturalnych procesów, Na-22 (jak również Be-7) emitowany był podczas atmosferycznych testów broni nuklearnej. Jego stężenie aktywności w powietrzu przewyższało wówczas 10-krotnie poziomy obserwowane w wyniku naturalnej produkcji wynoszące od $0,02 \cdot 10^{-4}$ do $0,2 \cdot 10^{-4}$ Bq/m³ [34]. Z uwagi na swoje własności

Na-22 podobnie jak Be-7 wykorzystywany jest jako znacznik procesów środowiskowych [72], chociaż zdecydowanie rzadziej z uwagi na trudności w pomiarze tak małych aktywności. Schemat rozpadu tego izotopu przedstawia rysunek 8:



Rysunek 8. Schemat rozpadu izotopu Na-22 [85].

7. Dawki promieniowania jonizującego w środowisku

Promieniowanie jonizujące przenikając przez materię (zarówno żywą jak i nieożywioną) przekazuje jej swoją energię, prowadząc do powstania zmian strukturalnych w postaci **jonizacji** oraz **wzbudzenia** atomów ośrodka. Sposób oddziaływania promieniowania z ośrodkiem zależy od wielu czynników, takich jak rodzaj emitowanego promieniowania, widmo energetyczne emitowanych cząstek, czy rodzaj absorbentu. W przypadku organizmów żywych najistotniejszym z biologicznego punktu widzenia efektem tych oddziaływań jest **niszczenie kwasu DNA** komórek:

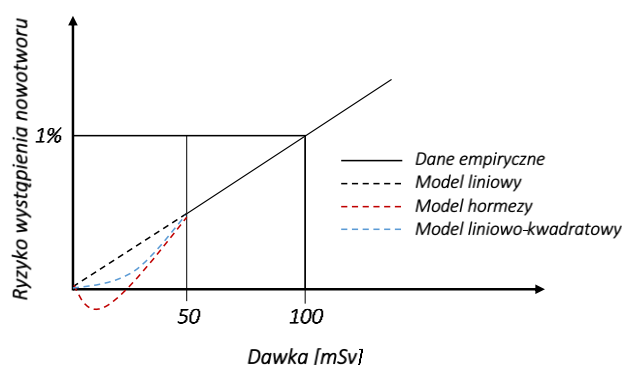
- ✓ **bezpośrednio** - w wyniku uszkodzenia pojedynczej lub podwójnej nici DNA
- ✓ **pośrednio** - za pomocą wolnych rodników, będących jednymi z produktów radiolizy wody.

Rodzaj oraz stopień zniszczenia komórek zależy przede wszystkim od ilości energii zdeponowanej w jednostce masy napromienianej substancji. Wielkość ta nosi nazwę **dawki promieniowania jonizującego** i mierzona jest w grejach [$1 \text{ Gy} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}}$]. Skutki narażenia organizmu żywego na działanie promieniowania jonizującego zależą, oprócz wartości pochłoniętej dawki, od następujących czynników:

- ✓ biologicznej wrażliwości napromienionych tkanek
- ✓ czasu przebywania w polu promieniowania jonizującego
- ✓ odległości od źródła promieniowania jonizującego
- ✓ rodzaju emitowanego promieniowania
- ✓ szybkości napromieniania

Makroskopowo skutki oddziaływania na człowieka promieniowania jonizującego dzielimy na **skutki deterministyczne** oraz **stochastyczne**. Do skutków deterministycznych należą m.in. choroba popromienna, bezpłodność oraz katarakta. Występują one po przekroczeniu dawki progowej, a ich ostrość rośnie wraz ze wzrostem pochłoniętej dawki. Pierwsze skutki deterministyczne występują przy dawce na całe ciało wynoszącej ok. 0,5 Gy. Skutki stochastyczne, do których należą mutacje genowe oraz aberracje chromosomowe, charakteryzują się natomiast bezprogową zależnością prawdopodobieństwa ich wystąpienia od pochłoniętej dawki, przy czym prawdopodobieństwo to rośnie wraz ze wzrostem dawki. W przeciwieństwie do skutków deterministycznych, ostrość skutków stochastycznych nie zależy od wartości zaabsorbowanej dawki. Oznacza to, że zarówno małe dawki promieniowania (np. dawki środowiskowe) jak również większe dawki promieniowania (np. dawki od ekspozycji medycznej) mogą spowodować wystąpienie skutków stochastycznych. Przykładem skutków stochastycznych jest wzrost częstości zapadania na nowotwory kości, płuc, tarczycy oraz białaczkę [7].

Pomimo wielu badań oraz eksperymentów dokładne określenie zależności skutków promieniowania jonizującego od pochłoniętej dawki nadal pozostaje wyzwaniem dla naukowców. Obecnie rozważa się trzy możliwe warianty **zależności dawka-skutek**: zależność liniową, liniowo-kwadratową oraz hormezę radiacyjną. W ocenie ryzyka zachorowalności na nowotwory popromienne, najczęściej wykorzystuje się model liniowy bezprogowy, w którym prawdopodobieństwo wystąpienia negatywnych skutków napromieniowania rośnie liniowo wraz ze wzrostem pochłoniętej dawki. Spośród wszystkich wymienionych modeli, jest on najbardziej konserwatywny, tj. zakładający najgorszy możliwy scenariusz. W przypadku modelu liniowo kwadratowego zakłada się w obszarze małych dawek (tj. do ok. 20 mSv) zależność dawka-skutek, jako funkcję kwadratową, która w tym przedziale przyjmuje niższe wartości prawdopodobieństwa wystąpienia skutków stochastycznych niż ma to miejsce w przypadku funkcji liniowej. Ostatnią intensywnie badaną możliwością jest występowanie w obszarze małych dawek tzw. hormezy radiacyjnej. Zjawisko to polega na pozytywnym wpływie małych dawek promieniowania jonizującego na organizm żywy, polegające na nabyciu przez jego komórki odporności na negatywne działanie większych dawek. Zgodnie z tym założeniem, w wyniku ulepszenia funkcjonowania komórkowych procesów naprawczych, maleje prawdopodobieństwo wystąpienia nowotworów popromiennych oraz innych chorób o podłożu genetycznym (wykres 4) [15, 16].



Wykres 4. Zależność ryzyka wystąpienia nowotworów od pochłoniętej dawki w różnych modelach dawka-skutek [30].

Warto mieć na uwadze, że rozważane powyżej modele należy traktować, jako hipotezy badawcze, wymagające naukowego potwierdzenia. Jest to o tyle trudne, że w przeciwieństwie do zakresu dużych dawek, dla którego udowodniono liniową zależność dawka-skutek, w obszarze małych dawek dużo trudniej określić biologiczne efekty oddziaływania promieniowania jonizującego na organizmy żywe [52]. Szczególnie, że jest ono jednym z wielu czynników stresogennych występujących w otoczeniu człowieka [17].

W celu oszacowania narażenia człowieka na skutki działania promieniowania jonizującego, oprócz określenia dawki, wyznacza się również wartości dawki równoważnej, dawki skutecznej oraz dawki obciążającej. Wielkości te umożliwiają ocenę narażenia wynikającego zarówno z ekspozycji zewnętrznej jak również wewnętrznej, tj. poprzez inhalację, ingestję lub wchłonięcie przez skórę izotopów promieniotwórczych. Jednostką wszystkich trzech wielkości jest *siwert* [$1 Sv = 1 J/1 kg$], który z fizycznego punktu widzenia jest tym samym, czym jednostka dawki *grej*, jednak dawka podana w Sv, oprócz wartości energii zdeponowanej w jednostce masy, uwzględnia również sposób oraz miejsce jej depozycji w organizmie.

Dawka równoważna – jest to dawka pochłonięta przez tkankę lub narząd, uwzględniająca poprzez współczynnik w_R rodzaj oraz energię padającego promieniowania (tabela 10) (wzór 47) [19]:

$$H_T = \sum_R w_R D_{T,R} \quad [Sv] \quad (47)$$

Gdzie:

$D_{T,R}$ - dawka promieniowania jonizującego typu R pochłonięta w tkance lub narządzie T [Gy]

w_R – bezwymiarowy czynnik wagowy, zależny od rodzaju i energii promieniowania (tabela 10)

Tabela 10. Wartości czynnika wagowego promieniowania, w_R [18].

Rodzaj promieniowania i zakres energii R	Czynnik wagowy promieniowania w_R
Fotony, wszystkie energie	1
Elektrony i miony, wszystkie energie	1
Neutrony o energii $E < 1$ MeV	$2,5 + 18,2 \exp\left(-\frac{(\ln(E))^2}{6}\right)$
Neutrony o energii $E > 1$ MeV i < 50 MeV	$5 + 17 \exp\left(-\frac{(\ln(2E))^2}{6}\right)$
Neutrony o energii $E > 50$ MeV	$2,5 + 3,25 \exp\left(-\frac{(\ln(0,04E))^2}{6}\right)$
Protony z wyłączeniem protonów odrzutu, $E > 2$ MeV	2
Cząstki alfa, fragmenty rozczepienia, ciężkie jądra	20

Dawka skuteczna (efektywna) - całkowita dawka pochłonięta przez organizm człowieka, będąca sumą dawki pochodzącej od ekspozycji wewnętrznej i zewnętrznej (wzór 48) [19]:

$$E = \sum_T w_T H_T = \sum_{T, R} w_T w_R D_{T,R} \quad [Sv] \quad (48)$$

Gdzie:

w_T - bezwymiarowy czynnik wagowy, zależny od rodzaju tkanki lub narządu (tabela 11)

Tabela 11. Wartości czynnika wagowego tkanki, w_T [18].

Tkanka (narząd) T	Czynnik wagowy tkanki (narządu) w_T
Gonady	0,08
Czerwony szpik kostny	0,12
Jelito grube	0,12
Płuca	0,12
Żołądek	0,12
Pęcherz moczowy	0,04
Gruzoły piersiowe	0,12
Wątroba	0,04
Przełyk	0,04
Tarczycyca	0,04
Skóra	0,01
Powierzchnia kości	0,01
Mózg	0,01
Gruzoły ślinowe	0,01
Pozostałe	0,12

Efektywna dawka obciążająca- w celu wyznaczenia całkowitej dawki skutecznej otrzymanej przez człowieka w określonym przedziale czasu, należy zsumować dawki skuteczne otrzymane w tym czasie z uwzględnieniem narażenia zewnętrznego i wewnętrznego (wzór 49) [18].

$$E = E_Z + \sum_j e(g)_{j,p} J_{j,p} + \sum_j e(g)_{j,o} J_{j,o} [Sv] \quad (49)$$

Gdzie:

E_Z – dawka skuteczna od narażenia zewnętrznego [Sv]

$e(g)_{j,p}, e(g)_{j,o}$ – jednostkowe dawki obciążające dla osoby z grupy wiekowej g , w wyniku wniknięcia drogą pokarmową (p) lub drogą oddechową (o) radionuklidu j o aktywności 1 Bq. Dawki te zależą odpowiednio od sposobu przechodzenia danego radionuklidu przez układ pokarmowy (poprzez współczynnik f_1) oraz od szybkości absorpcji w płucach (F-szybka, M-średnia, S-wolna) $\left[\frac{Sv}{Bq}\right]$

$J_{j,p}, J_{j,o}$ – aktywność wchłoniętego radioizotopu j drogą pokarmową (p) lub oddechową (o) [Bq]

Poniżej wartości jednostkowych dawek obciążających dla radioizotopów będących przedmiotem badań prowadzonych w ramach tej pracy (tabela 12, 13).

Tabela 12. Obciążająca dawka skuteczna e(g) dla osób z ogółu ludności od wniknięcia radionuklidu o aktywności 1 Bq drogą pokarmową [Sv] oraz wartości czynnika f1 stosowanego przy obliczeniu tej dawki [18].

Nuklid	Czas półrozpadu	Wiek g< 1 rok		Wiek g> 1 rok		1-2 lat	2-7 lat	7-12 lat	12-17 lat	>17 lat
		f1	e(g)	f1	e(g)	e(g)	e(g)	e(g)	e(g)	e(g)
Be-7	53,3 dni	0,02	$1,8 \cdot 10^{-10}$	0,005	$1,3 \cdot 10^{-10}$	$7,7 \cdot 10^{-11}$	$5,3 \cdot 10^{-11}$	$3,5 \cdot 10^{-11}$	$2,8 \cdot 10^{-11}$	
Na-22	2,6 lat	1	$2,1 \cdot 10^{-8}$	1	$1,5 \cdot 10^{-8}$	$8,4 \cdot 10^{-9}$	$5,5 \cdot 10^{-9}$	$3,7 \cdot 10^{-9}$	$3,2 \cdot 10^{-9}$	
K-40	$1,28 \cdot 10^9$ lat	1	$6,2 \cdot 10^{-8}$	1	$4,2 \cdot 10^{-8}$	$2,1 \cdot 10^{-8}$	$1,3 \cdot 10^{-8}$	$7,6 \cdot 10^{-9}$	$6,2 \cdot 10^{-9}$	
Cs-137	30 lat	1	$2,1 \cdot 10^{-8}$	1	$1,2 \cdot 10^{-8}$	$9,6 \cdot 10^{-9}$	$1,0 \cdot 10^{-8}$	$1,3 \cdot 10^{-8}$	$1,3 \cdot 10^{-8}$	
Pb-210	22,3 lat	0,6	$8,4 \cdot 10^{-6}$	0,2	$3,6 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{-6}$	$1,9 \cdot 10^{-6}$	$1,9 \cdot 10^{-6}$	$6,9 \cdot 10^{-6}$	
Pu-238	87,7 lat	0,005	$4,0 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$4,0 \cdot 10^{-7}$	$3,1 \cdot 10^{-7}$	$2,4 \cdot 10^{-7}$	$2,2 \cdot 10^{-7}$	$2,3 \cdot 10^{-7}$	
Pu-239	$2,41 \cdot 10^4$ lat	0,005	$4,2 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$4,2 \cdot 10^{-7}$	$3,2 \cdot 10^{-7}$	$2,7 \cdot 10^{-7}$	$2,4 \cdot 10^{-7}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$	
Pu-240	$6,54 \cdot 10^3$ lat	0,005	$4,2 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$4,2 \cdot 10^{-7}$	$3,3 \cdot 10^{-7}$	$2,7 \cdot 10^{-7}$	$2,4 \cdot 10^{-7}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$	

Tabela 13. Obciążająca dawka skuteczna e(g) dla osób z ogółu ludności od wniknięcia radionuklidu o aktywności 1 Bq drogą oddechową [Sv] oraz wartości czynnika f1 stosowanego przy obliczeniu tej dawki [18].

Nuklid	Typ absorpcji płucnej	Wiek g< 1 rok		Wiek g> 1 rok		1-2 lat	2-7 lat	7-12 lat	12-17 lat	>17 lat
		f1	e(g)	f1	e(g)	e(g)	e(g)	e(g)	e(g)	e(g)
Be-7	M	0,02	$2,5 \cdot 10^{-10}$	0,005	$2,1 \cdot 10^{-10}$	$1,2 \cdot 10^{-10}$	$8,3 \cdot 10^{-11}$	$6,2 \cdot 10^{-11}$	$5,0 \cdot 10^{-11}$	
	S	0,02	$2,5 \cdot 10^{-10}$	0,005	$2,4 \cdot 10^{-10}$	$1,4 \cdot 10^{-10}$	$9,6 \cdot 10^{-11}$	$6,8 \cdot 10^{-11}$	$5,5 \cdot 10^{-11}$	
Na-22	F	1	$9,7 \cdot 10^{-9}$	1	$7,3 \cdot 10^{-9}$	$3,8 \cdot 10^{-9}$	$2,4 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-9}$	$1,3 \cdot 10^{-9}$	
K-40	F	1	$2,4 \cdot 10^{-8}$	1	$1,7 \cdot 10^{-8}$	$7,5 \cdot 10^{-8}$	$4,5 \cdot 10^{-9}$	$2,5 \cdot 10^{-9}$	$2,1 \cdot 10^{-9}$	
Cs-137	F	1	$8,8 \cdot 10^{-9}$	1	$5,4 \cdot 10^{-9}$	$3,6 \cdot 10^{-9}$	$3,7 \cdot 10^{-9}$	$4,4 \cdot 10^{-9}$	$4,6 \cdot 10^{-9}$	
	M	0,2	$3,6 \cdot 10^{-8}$	0,1	$2,9 \cdot 10^{-8}$	$1,8 \cdot 10^{-8}$	$1,3 \cdot 10^{-8}$	$1,1 \cdot 10^{-8}$	$9,7 \cdot 10^{-9}$	
Pb-210	S	0,02	$1,1 \cdot 10^{-7}$	0,01	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$7,0 \cdot 10^{-8}$	$4,8 \cdot 10^{-8}$	$4,2 \cdot 10^{-8}$	$3,9 \cdot 10^{-8}$	
	F	0,6	$4,7 \cdot 10^{-6}$	0,2	$2,9 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{-6}$	$1,4 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$9,0 \cdot 10^{-7}$	
Pu-238	M	0,2	$5,0 \cdot 10^{-6}$	0,1	$3,7 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$1,1 \cdot 10^{-6}$	
	S	0,02	$1,8 \cdot 10^{-5}$	0,01	$1,8 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$7,2 \cdot 10^{-6}$	$5,9 \cdot 10^{-6}$	$5,6 \cdot 10^{-6}$	
Pu-239	F	0,005	$2,0 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$	
	M	0,005	$7,8 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$7,4 \cdot 10^{-5}$	$5,6 \cdot 10^{-5}$	$4,4 \cdot 10^{-5}$	$4,3 \cdot 10^{-5}$	$4,6 \cdot 10^{-5}$	
Pu-240	S	$1 \cdot 10^{-4}$	$4,5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$4,0 \cdot 10^{-5}$	$2,7 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-5}$	$1,6 \cdot 10^{-5}$	
	F	0,005	$2,1 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	
Pu-239	M	0,005	$8 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$7,7 \cdot 10^{-5}$	$6,0 \cdot 10^{-5}$	$4,8 \cdot 10^{-5}$	$4,7 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$	
	S	$1 \cdot 10^{-4}$	$4,3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$3,9 \cdot 10^{-5}$	$2,7 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-5}$	$1,6 \cdot 10^{-5}$	
Pu-240	F	0,005	$2,1 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	
	M	0,005	$8 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$7,7 \cdot 10^{-5}$	$6,0 \cdot 10^{-5}$	$4,8 \cdot 10^{-5}$	$4,7 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$	
Pu-240	S	$1 \cdot 10^{-4}$	$4,3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$3,9 \cdot 10^{-5}$	$2,7 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-5}$	$1,6 \cdot 10^{-5}$	

Dawki efektywne otrzymywane przez człowieka w wyniku ekspozycji na promieniowanie jonizujące występujące w środowisku naturalnym, są wynikiem zarówno ekspozycji zewnętrznej jak i wewnętrznej. Źródłem ekspozycji zewnętrznej jest promieniowanie gamma emitowane przez radionuklidy występujące w przyrodzie oraz promieniowanie kosmiczne, natomiast źródłem ekspozycji wewnętrznej oprócz promieniowania gamma jest promieniowanie alfa i beta, które z uwagi na krótki zasięg w powietrzu jest groźne dla zdrowia jedynie w wyniku wniknięcia radionuklidów do organizmu człowieka. Tabela 14 przedstawia zestawienie dawek skutecznych, jakie średnio otrzymuje mieszkaniec Ziemi w ciągu roku z naturalnych oraz antropogenicznych źródeł promieniowania jonizującego obecnych w środowisku. Należy przy tym wspomnieć, że również sam człowiek jest emitorem promieniowania jonizującego, poprzez radionuklidy naturalnie występujące w jego organizmie, m.in. K-40, izotopy pochodzące z szeregów promieniotwórczych oraz kosmogeniczne C-14 i H-3.

Tabela 14. Średnie roczne dawki efektywne otrzymywane przez mieszkańca Ziemi [14, 25].

Źródło	Średnia roczna dawka [mSv]	Typowy zakres dawek indywidualnych [mSv]	Uwagi
Naturalne źródła ekspozycji na promieniowanie jonizujące			
Inhalacja (radonu)	1,26	0,2-10	Dawka może być znacznie wyższa w zależności od rodzaju budynku, lokalizacji
Ekspozycja zewnętrzna od izotopów pochodzenia ziemskiego	0,48	0,3-1	Dawka może być wyższa w zależności od lokalizacji
Ingestia	0,29	0,2-1	Dawka zależy od miejsca zamieszkania i stosowanej diety
Promieniowanie kosmiczne	0,39	0,3-1	Dawka rośnie wraz ze wzrostem wysokości n.p.m
Całkowita dawka od naturalnych źródeł	2,4	1-13	Znaczna liczba populacji otrzymuje dawki z zakresu 10-20 mSv
Sztuczne źródła ekspozycji na promieniowanie jonizujące			
Diagnostyka medyczna (bez terapii)	0,6	0-kilkadziesiąt	Średnia dawka zależy od poziomu opieki medycznej i zwykle waha się od 0,3 do 2 mSv. Indywidualne dawki zależą od rodzaju wykonywanego badania
Atmosferyczne testy broni jądrowej	0,005	Na obszarach prowadzonych testów dawki są ciągle wyższe	Maksymalna średnia dawka została zarejestrowana w 1963 roku i wynosiła 0,11 mSv
Ekspozycja zawodowa	0,005	0-20	Średnia dawka dla wszystkich pracowników szacowana jest na 0,7 mSv. Największy wkład do średniej dawki oraz najwyższe ekspozycje występują w związku z narażeniem na naturalne źródła promieniowania (głównie radon w kopalniach)
Katastrofa jądrowa w Czarnobylu	0,002	W 1986 roku średnia dawka dla ponad 350 000 osób przekraczała 10 mSv	Maksymalna średnia dawka dla półkuli północnej wynosiła 0,04 mSv i została zarejestrowana w 1986 roku. Dawki równoważne dla tarczycy były znacznie wyższe.
Cykl paliwowy reaktorów jądrowych (ekspozycja dla ogółu ludności)	0,002	Najwyższe dawki sięgające 0,02 mSv rejestrowane są w odległości do 1 km od niektórych obiektów jądrowych	Dawka zależna od odległości zamieszkania/przebywania ludności od obiektu jądrowego
Całkowita dawka od sztucznych źródeł	0,6	0-kilkadziesiąt	Indywidualne dawki zależą głównie od rodzaju przebytych badań medycznych, ekspozycji zawodowej oraz od odległości od obszarów, na których doszło do wypadków jądrowych lub testów z użyciem broni jądrowej

Jak widać z tabeli 14 średnia roczna dawka wynikająca z ekspozycji na naturalne tło promieniotwórcze wynosi ok. 2,4 mSv. Jest to jednak wartość uśredniona dla całego globu, co oznacza, że istnieją na Ziemi obszary o niższym jak i wyższym poziomie radioaktywności w środowisku. Do miejsc o znacznie wyższym poziomie radioaktywności, w których moc dawki od tła promieniotwórczego może być wyższa nawet kilkadziesiąt razy od wartości średniej należą m.in.: pas brzegowy morza Arabskiego w prowincji Kerała, wybrzeże prowincji Tamil Nadu, wybrzeże stanów Espirito Santo i Rio de Janeiro w Brazylii, prowincja Guangding w Chinach oraz miejscowość Ramsar w Iranie. Lokalny wzrost promieniotwórczości w środowisku jest tam spowodowany występowaniem formacji geologicznych takich jak piaski monacytowe czy złoża apatytów zawierających bardzo duże stężenia aktywności naturalnych izotopów promieniotwórczych (głównie uranu i toru) [6].

Pomimo, że dawki promieniowania jonizującego pochodzące od radionuklidów występujących w przyrodzie są generalnie na bardzo niskim poziomie i w związku z tym nie stanowią zagrożenia dla zdrowia człowieka, podlegają one stałemu monitorowaniu i kontroli. Znajomość aktualnego tła promieniotwórczego dla różnych obszarów Ziemi jest bowiem istotnym elementem oceny zagrożenia radiacyjnego powstałego w wyniku wprowadzania do środowiska określonych ilości sztucznych izotopów promieniotwórczych (np. w wyniku awarii w obiekcie jądrowym) jak również zaburzenia rozkładu przestrzennego radioaktywności naturalnej zawartej w skorupie ziemskiej (np. podczas wydobywania paliw kopalnych). Ewidencją źródeł promieniowania jonizującego występujących w środowisku, szacowaniem dawek oraz ochroną mieszkańców Ziemi przed promieniowaniem zajmuje się szereg instytucji, z których najważniejsze to Międzynarodowa Agencja Atomowa (IAEA), Komitet Naukowy ONZ ds. Skutków Promieniowania Atomowego (UNSCEAR) oraz Międzynarodowa komisja ds. ochrony radiologicznej (ICRP). W Polsce monitorowaniem poziomu radioaktywności występującej w środowisku oraz ochroną społeczeństwa przed skutkami działania promieniowania jonizującego zajmuje się Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej (CLOR) oraz Centrum do spraw Zdarzeń Radiacyjnych (CEZAR) podlegające Państwowej Agencji Atomistyki (PAA). Instytut Fizyki Jądrowej PAN im. Henryka Niewodniczańskiego (IFJ PAN) jest jedną z 9 placówek specjalistycznych w Polsce wspomagających PAA w zakresie zadań związanych z monitoringiem radioaktywności środowiska. Ponadto na terenie IFJ PAN znajduje się jedna z 12 stacji wczesnego wykrywania skażeń promieniotwórczych ASS-500, z której dane w postaci cotygodniowych raportów przekazywane są do CLOR. Od 2017 roku IFJ PAN (dokładnie Pracownia Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska) jest również członkiem międzynarodowej sieci laboratoriów ALMERA (Analytical Laboratories for the Measurement of Environmental Radioactivity), która skupia 160 laboratoriów z całego świata mających zapewnić wiarygodne oraz szybkie analizy próbek środowiskowych w awaryjnych sytuacjach intencjonalnego lub przypadkowego uwolnienia do środowiska izotopów promieniotwórczych.

Oprócz naturalnego tła promieniotwórczego, drugim głównym źródłem ekspozycji na promieniowanie jonizujące dla człowieka jest ekspozycja podczas poddawania się procedurom medycznym. W medycynie wykorzystywane są sztucznie otrzymany izotopy promieniotwórcze, takie jak I-131, I-123, Tc-99m, F-18, Ga-67, Sm-153, Y-90 (tomografia emisyjna pojedynczych fotonów, pozytonowa tomografia emisyjna, scyntygrafia, radioterapia), promieniowanie X (rentgenodiagnostyka, tomografia komputerowa), promieniowanie neutronowe (terapia borowo neutronowa), promieniowanie gamma (klasyczna teleradioterapia z użyciem Co-60) oraz lekkie i ciężkie cząstki naładowane (radioterapia elektronowa, protonowa).

Dla porównania ze średnim naturalnym tłem promieniotwórczym, średnie dawki otrzymywane jednorazowo przez pacjenta podczas wykonywania diagnostycznych procedur medycznych wynoszą od 0,001 mSv w przypadku zdjęcia RTG kończyny (co jest równoznaczne z dawką od tła promieniotwórczego otrzymaną w ciągu 3h) do 16 mSv w przypadku angiografii naczyń wieńcowych (co jest równe dawce otrzymanej w ciągu 6,6 lat od tła naturalnego) [26]. W przypadku radioterapii są to już dawki wynoszące od kilkudziesięciu do kilkuset Sv dawki równoważnej na napromieniany organ, w zależności m.in. do typu i umiejscowienia danego nowotworu.

Aby prawidłowo interpretować tego rodzaju porównania oraz oceniać skutki ekspozycji na promieniowanie jonizujące bardzo ważne jest rozróżnienie dawki efektywnej otrzymywanej w wyniku napromieniowania całego ciała od dawki równoważnej otrzymywanej w wyniku napromieniania pojedynczego organu lub narządu. Należy pamiętać, że **dawka letalna (LD₅₀)** wynosząca dla człowieka od 3 do 5 Sv (która powoduje śmierć 50% populacji w ciągu miesiąca od napromieniowania) wyrażona jest, jako dawka efektywna (na całe ciało), natomiast dawki stosowane w radioterapii określone są, jako dawki równoważne.

W ramach ochrony przed promieniowaniem osób z ogółu ludności oraz pracowników zawodowo narażonych na działanie promieniowania jonizującego ustalono limity dawek, jakie można otrzymać w ciągu roku, przy czym nie należą do nich ani dawki pochodzące od naturalnego tła promieniotwórczego (chyba, że jego wartość została podwyższona w wyniku działalności człowieka) ani dawki pochodzące od procedur medycznych. Tabela 15 przedstawia zbiorcze zestawienie dawek granicznych, których poza przypadkami określonymi w ustawie nie należy przekraczać [18].

Tabela 15. Roczne dawki graniczne wg. Rozporządzenia Rady Ministrów z 2005r [18].

Grupa narażonych		Dawka skuteczna [mSv]	Dawka równoważna [mSv]		
			Soczewki oczu ²	Skóra ^{2,3}	Kończyny ⁴
Ogół ludności ¹		1 ⁽⁵⁾	15	50	-
Osoby narażone zawodowo	Do 16 lat ⁷	1 ⁽⁵⁾	15	50	-
	16-18 lat ⁷	6	50	150	150
	Powyżej 18 lat	20 ⁽⁶⁾	150	500	500
	Kobiety w ciąży	1 ⁽⁸⁾	-	-	-

1. Nie dotyczy osób uczestniczących w usuwaniu skutków zdarzenia radiacyjnego oraz w działaniach interwencyjnych, jeśli znajdują się one w tzw. Sytuacjach narażenia wyjątkowego (np. ratowanie życia ludzkiego) por. art. 20 Prawa Atomowego.

2. Określenie dawki granicznej dla dawki równoważnej na soczewki oczu i skórę ma przede wszystkim zapobiec występowaniu skutków deterministycznych dla tych organów (zaćma, zmiany skórne).

3. Wartość średnia, wyznaczona dla dowolnej powierzchni 1cm² napromienianej części skóry.

4. Dłonie, przedramiona, stopy, podudzia.

5. Dawka może być przekroczona w danym roku kalendarzowym pod warunkiem, że w ciągu kolejnych pięciu lat kalendarzowych jej sumaryczna dawka nie przekroczy 5mSv.

6. Dawka może być przekroczona w roku kalendarzowym do 50mSv pod warunkiem, że w kolejnych pięciu latach kalendarzowych jej sumaryczna wartość nie przekroczy 5mSv.

7. Osoby w wieku poniżej 18 lat mogą pracować w warunkach narażenia tylko w ramach nauki lub przyuczania do zawodu.

8. Dotyczy dawki na zarodek i płód, ponadto kobieta karmiąca piersią nie może być zatrudniona w warunkach narażenia na skażenia zewnętrzne i wewnętrzne.

II. Badania własne

1. Cel i motywacja pracy

Celem przedstawionej pracy doktorskiej było zbadanie dynamiki zmian stężenia i depozycji aktywności wybranych izotopów alfa i gamma promieniotwórczych (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K) w atmosferze na podstawie wieloletniego zestawu danych pomiarowych próbek aerozoli atmosferycznych pochodzących z przygruntowej warstwy powietrza oraz próbek całkowitego opadu atmosferycznego zebranych w Krakowie w latach 2005-2016. Izotopy będące przedmiotem badań reprezentują ważne (ze względu na pochodzenie) grupy izotopów promieniotwórczych występujących w środowisku, tj. izotopy pochodzenia ziemskiego (K-40 i Pb-210), izotopy kosmogeniczne (Be-7 i Na-22) oraz izotopy antropogeniczne (Pu-238+240, Pu-238 i Cs-137) i w związku z tym mogą być wykorzystywane jako wskaźniki procesów transportu aerozoli w atmosferze. Komplementarne zbadanie ich zawartości oraz zmienności w czasie zarówno w przygruntowej warstwie powietrza jak i w całkowitym opadzie atmosferycznym dla tak długiego okresu pomiarowego może stanowić cenny wkład do bazy wiedzy z dziedziny badań radioaktywności atmosfery.

Analiza dynamiki procesów transportu radioizotopów w atmosferze pełni istotną rolę w modelowaniu kierunków i szybkości rozprzestrzeniania się skażeń promieniotwórczych, zarówno dla wypadków jądrowych, testów broni nuklearnej, jak i podczas bezawaryjnej eksploatacji obiektów jądrowych (śladowe emisje). Umiejętność zamodelowania i przewidzenia poziomu skażenia promieniotwórczego w czasie i w przestrzeni umożliwia szybszą i bardziej precyzyjną ocenę narażenia organizmów żywych na działanie promieniowania jonizującego, co wraz z poznaniem mechanizmów retencji radioizotopów w atmosferze, stanowi zasadniczy element ochrony radiologicznej środowiska przyrodniczego. W przypadku modelowania oraz analizy dynamiki zmian radioaktywności atmosfery istnieje bardzo duża liczba czynników, które należy uwzględnić. Są to m.in.: różnorodność źródeł skażeń promieniotwórczych, występowanie procesów takich jak dyfuzja oraz kierunkowy transport radionuklidów w atmosferze, zjawisko wymywania izotopów z atmosfery wraz z opadami oraz zjawisko powtórnej emisji do atmosfery w wyniku resuspensji z powierzchni lądów i oceanów [20]. Mnogość zjawisk fizycznych i chemicznych, które rządzą procesami transportu radioizotopów w atmosferze i ich przechodzeniem przez kolejne piętra ekosystemu, powoduje, że wiedza w tej dziedzinie ciągle jeszcze nie jest kompletna, wymaga weryfikacji i uzupełnienia, co uzasadnia podejmowanie kolejnych projektów badawczych o tej tematyce.

W ramach projektu badawczego będącego podstawą do napisania rozprawy doktorskiej za cele naukowe postawiono:

- wyznaczenie zawartości izotopów ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K w przygruntowej warstwie powietrza oraz w całkowitym opadzie atmosferycznym
- wykrycie korelacji wzajemnych, w szczególności sezonowych między wybranymi izotopami antropogenicznymi (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs), kosmogenicznymi (^7Be , ^{22}Na) i ziemskimi (^{40}K , ^{210}Pb) w przygruntowej warstwie powietrza i w całkowitym opadzie atmosferycznym

- zbadanie zależności stężenia aktywności rozważanych izotopów w przygruntowej warstwie powietrza od stężenia pyłu zawieszonego w powietrzu
- zbadanie zależności stężenia i depozycji aktywności rozważanych izotopów w badanych próbkach od wybranych wskaźników meteorologicznych
- zbadanie zależności między stężeniem aktywności rozważanych izotopów w przygruntowej warstwie powietrza, a stężeniem i depozycją aktywności tych izotopów w całkowitym opadzie atmosferycznym
- identyfikacja źródeł plutonu w badanych próbkach na podstawie znajomości stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ oraz $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$
- oszacowanie dawek pochodzących od narażenia zewnętrznego i wewnętrznego na promieniowanie jonizujące emitowane przez rozważane izotopy zawarte w przygruntowej warstwie powietrza
- zbadanie sezonowości oraz trendów długookresowych w szeregach czasowych stężenia i depozycji aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych w badanych próbkach

Z uwagi na długi badany okres (12 lat) oraz dużą liczbę próbek (tygodniowe próbki filtrów powietrza i miesięczne próbki całkowitego opadu atmosferycznego) analizowany zbiór danych złożony był z ok. 3800 wyników pomiarowych. Analiza tak dużego zbioru rzeczywistych danych (zawierających również braki i niespójności) wymaga podejścia systemowego, dlatego zdecydowano, że wszystkie analizy wykonane zostaną z użyciem metod eksploracji danych w oparciu o model CRISP-DM [78].

2. Materiały i metody

2.1. Opis materiału badawczego i zastosowanych metod pomiarowych

Materiał badawczy stanowiły 134 miesięczne próbki całkowitego opadu atmosferycznego oraz 601 tygodniowych próbek aerozoli atmosferycznych zebrane w latach 2005-2016 na terenie IFJ PAN w Krakowie. Stacja poboru opadu atmosferycznego składa się ze specjalnie wyprofilowanej czerpni o powierzchni 2,28 m² znajdującej się ok. 1,8 m nad powierzchnią gruntu oraz dwóch beczek zbierających o łącznej pojemności 160 dm³. Do poboru próbek aerozoli atmosferycznych z przyziemnej warstwy powietrza atmosferycznego służą natomiast dwie wysokowydajne, pracujące w trybie ciągłym stacje do poboru aerozoli atmosferycznych MASS-500 oraz ASS-500, w których montowane są filtry Petryanova FPP-15-1.5 zmieniane w cyklu tygodniowym. Filtry te mogą zatrzymywać aerozole, których średnica wynosi przynajmniej 0,3 μm, przy czym największa wydajność (96-99%) tego procesu obserwowana jest dla cząstek o średnicach od 0,3 μm do 1,25 μm (przy szybkości przepływu powietrza w zakresie 0,25 m/s - 0,4 m/s) [53]. Stacja MASS-500 jest własnością Instytutu Fizyki Jądrowej PAN w Krakowie i służy do badań. Powstała w 2001 roku, jako modyfikacja typowego urządzenia do poboru próbek ASS-500 pracującego w ramach ogólnopolskiej Sieci Wczesnego Wykrywania Awarii Obiektów Jądrowych,

do której IFJ PAN należy od 1990 roku. Filtry powietrza z jednego roku (2016) były osobiście zmieniane i przygotowywane do pomiarów przez autorkę tej pracy, zarówno w stacji MASS-500 jak i ASS-500, dla której dodatkowo wykonywano tygodniowe raporty pomiarowe dla Centralnego Laboratorium Ochrony Radiologicznej.

Do analizy promieniotwórczości radioizotopów będących przedmiotem badań (^{238}Pu , $^{249+240}\text{Pu}$, ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K) zostało wykorzystane laboratorium radiochemiczne oraz aparatura spektrometryczna znajdująca się na wyposażeniu Pracowni Badań Skazań Radioaktywnych Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN (tj. spektrometry promieniowania gamma z detektorami germanowymi HPGe oraz spektrometry promieniowania alfa z detektorami krzemowymi). Jednak z uwagi na dużą liczbę uzyskanych źródeł alfa promieniotwórczych oraz długi czas pomiaru pojedynczego widma promieniowania alfa (ok. 1 tydzień), aż 90% wszystkich pomiarów alfa spektrometrycznych zostało wykonane w Zakładzie Geologii i Wód Mineralnych na Wydziale Geoinżynierii, Górnictwa i Geologii Politechniki Wrocławskiej, gdzie udostępnionych zostało 12 komór pomiarowych spektrometru Canberra Alpha Analyst.

Aktywność izotopów ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K została wyznaczona na podstawie pomiarów przeprowadzonych przy użyciu spektrometrii promieniowania gamma, natomiast aktywność izotopów ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu przy użyciu spektrometrii promieniowania alfa. Inaczej niż w przypadku spektrometrii promieniowania gamma, w pomiarach promieniowania alfa, ze względu na mały zasięg tych cząstek w materii, przygotowanie próbek do pomiaru aktywności wymagało radiochemicznego wydzielenia pierwiastków z matrycy i przygotowania odpowiednio cienkich źródeł alfa spektrometrycznych. W ramach pracy doktorskiej wykonano samodzielnie procedury radiochemicznego wydzielenia ^{238}Pu oraz $^{239+240}\text{Pu}$ z 81 próbek całkowitego opadu atmosferycznego oraz z 89 próbek aerozoli atmosferycznych (powstałych z ok. 700 filtrów powietrza zebranych z obu stacji), pochodzących z lat 2010-2016. Wykorzystanie filtrów do pomiarów alfa spektrometrycznych ze stacji ASS-500 odbyło się za zgodą CLOR i umożliwiło (poprzez zwiększenie ilości materiału badawczego) uzyskanie bardziej wiarygodnych wyników pomiarowych.

Łącznie w ramach niniejszej pracy przeanalizowano ok. 700 widm promieniowania gamma pochodzących z pomiarów prowadzonych w latach 2005-2016 dla próbek pobieranych w tym okresie oraz 170 widm promieniowania alfa zmierzonych w 2017 i 2018 roku, dla próbek pobieranych w latach 2010-2016. Po opracowaniu i wstępnej analizie wyników gamma spektrometrycznych zdecydowano o powtórzeniu części pomiarów próbek aerozoli atmosferycznych w celu uzyskania niższego limitu detekcji dla radioizotopu Cs-137. W tym celu dodatkowo przeprowadzono ok. 150 powtórnych pomiarów, z których część wykonana została w Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych IFJ PAN.

2.2. Charakterystyka geograficzna i meteorologiczna miejsca poboru próbek

Stacja poboru próbek aerozoli atmosferycznych oraz stacja poboru całkowitego opadu atmosferycznego zlokalizowane są w północno-zachodniej części Krakowa w obszarze o niskiej zabudowie, na terenie Instytutu Fizyki Jądrowej PAN. Kraków jest miastem leżącym w południowej Polsce w dolinie rzeki Wisły płynącej na tym odcinku w kierunku z zachodu na

wschód. Jest to miejsce na granicy wielkich struktur tektonicznych: Pozaalpejskiej Europy Środkowej i Regionu Karpackiego. Północna część miasta należy do Wyżyny Śląsko-Krakowskiej oraz Wyżyny Małopolskiej należących do regionu Wyżyny Polskie, centralna i południowa część to Podkarpacie Północne oraz Zewnętrzne Karpaty Zachodnie. Sama stacja znajduje się na obszarze Pomostu Krakowskiego należącego do podprowincji Podkarpacie Północne (rysunek 9, 10) [54].



Rysunek 9. Mapa geofizyczna Polski [54].

Północne Podkarpacie na terenie Krakowa położone jest na wysokości około 200 m n.p.m i posiada cechy kotliny ograniczonej od północy Wyżynami, a od południa Pogórzem Karpackim sięgającymi 450 m n.p.m. Takie warunki fizycznogeograficzne wpływają na klimat, który cechuje się wyższymi amplitudami temperatury, mniejszymi prędkościami wiatrów, niższymi wartościami opadów w stosunku do pozamiejskich regionów [55].



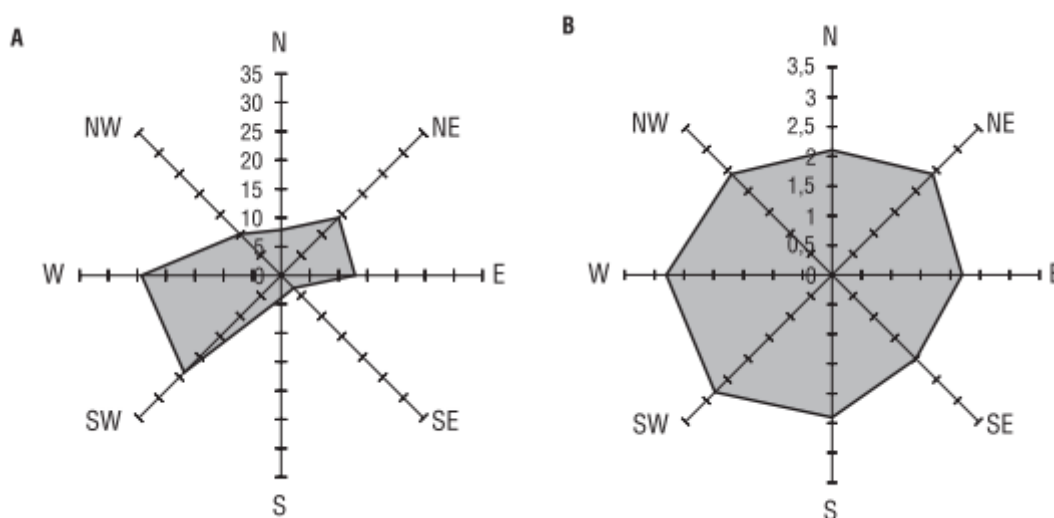
Rysunek 10. Mapa geofizyczna Krakowa. Zaznaczono położenie stacji pomiarowej IFJ PAN [55].

Klimat Krakowa i najbliższych okolic jest umiarkowany przejściowy charakteryzuje się częstymi zmianami pogody, kształtowanymi głównie przez ścierające się masy powietrza polarne morskie (ok 57% dni w roku), suche i chłodne powietrze polarne kontynentalne (21%), powietrze arktyczne (8%) oraz powietrze zwrotnikowe (3%). W ciągu roku powyższe udziały procentowe wahają się znacznie, przy czym ok. 10% dni kształtowanych jest przez więcej niż jedną masę powietrza [55].

Opady w Krakowie występują średnio przez 47% dni w roku, większa częstość przypada na miesiące zimowe z przewagą wpływu wilgotnych mas powietrza z Atlantyku. Z tej liczby

ponad 80% stanowią dni z opadem słabym, opady silne ($\geq 10\text{mm}$) pojawiają się głównie latem. Najmniej dni z opadami notuje się we wrześniu. W Krakowie występują różne rodzaje opadów, z przewagą deszczy i mżawek (59%), a poza nimi śnieg i śnieg z deszczem (26%), opady burzowe (12%), grad oraz pozioma kondensacja i krystalizacja pary wodnej [55].

Położenie Krakowa w dolinie Wisły przebiegającej równoleżnikowo, osłoniętej od północy i południa znacząco wpływa na warunki anemologiczne. W mieście przeważają wiatry z kierunku zachodniego (24%) i południowo-zachodniego (24%) oraz północno-wschodniego (14%) i wschodniego (13%). Wiatry z kierunku północnego stanowią 8%, a z kierunków południowego i południowo-wschodniego łącznie 7% (rysunek 11). W Krakowie przeważają wiatry słabe i bardzo słabe. Średnia prędkość wiatru w mieście wynosi 1,9 m/s, przy czym najwyższe prędkości notuje się w marcu i kwietniu, a najniższe w sierpniu i wrześniu. Szczególnymi rodzajami wiatru występującymi w Krakowie są: ciepły, suchy, porywisty wiatr halny, nocny spływ chłodnego powietrza ze stoków w doliny powodujący mgły i oblodzenia oraz tzw. bryza miejska, czyli słaby prąd powietrza z okolicznych terenów do centrum gdzie występuje wyspa ciepła. Średnia częstość cisz atmosferycznych dla Krakowa wynosi 25%, przy czym najwięcej występuje jesienią i zimą, a najmniej wiosną [55].



Rysunek 11. Częstość kierunków bez udziału cisz w % (A) i średnie roczne prędkości wiatru [m/s] (B) w Krakowie (1961-1980) [55].

2.3. Przygotowanie materiału badawczego do pomiarów spektrometrycznych

Po poborze próbek całkowitego opadu atmosferycznego oraz próbek aerozoli atmosferycznych następuje proces ich przygotowania do pomiarów spektrometrycznych. W celu

przygotowania próbek do pomiarów prowadzonych przy użyciu **spektrometrii promieniowania gamma** wykonuje się następujące procedury:

- **W przypadku próbek całkowitego opadu atmosferycznego**
 - ✓ zakwaszenie próbki stężonym kwasem azotowym HNO_3 (ok. $0,1 \text{ cm}^3$ kwasu na 1 dm^3 próbki), w celu uniknięcia adsorpcji radionuklidów zawartych w próbce na wewnętrznej powierzchni naczynia zbierającego
 - ✓ zredukowanie objętości próbki od początkowej dużej objętości (od 50 do 300 L) do ok. 100 cm^3 za pomocą sukcesywnego odparowywania w naczyniu ze stali nierdzewnej, najpierw w stacji pomiarowej, a następnie w szklanej zlewce w laboratorium radiochemicznych w dygestorium
 - ✓ wyczyszczenie za pomocą filtrów papierowych (bezpopiołowych) oraz $0,1 \text{ M HNO}_3$ wewnętrznych powierzchni naczyń, w których próbka była zbierana i przechowywana
 - ✓ spopielenie otrzymanych filtrów papierowych w piecu muflowym w temperaturze 400°C i połączenie ich z próbką
 - ✓ ilościowe przeniesienie próbki do jednorazowego plastikowego pojemnika o objętości 120 cm^3 i odparowanie do sucha za pomocą promiennika podczerwieni
 - ✓ zamknięcie pojemnika i umieszczenie go w polietylowym woreczku.

- **W przypadku próbek aerozoli atmosferycznych**
 - ✓ usunięcie filtra powietrza ze stacji pomiarowej
 - ✓ oddzielenie filtra od podkładu, na którym był osadzony
 - ✓ kompresja filtra za pomocą manualnej prasy hydraulicznej do postaci krążka o średnicy ok. 5 cm i grubości ok. 0,5 cm
 - ✓ umieszczenie filtra wraz z opisem w polietylowym woreczku

W celu przygotowania próbek do pomiarów prowadzonych przy użyciu **spektrometrii promieniowania alfa**, tak jak wspomniano w punkcie 2.1 rozdziału II, przeprowadza się procedury radiochemicznego wydzielenia pierwiastków promieniotwórczych z matrycy próbki. W przypadku próbek filtrów powietrza i próbek całkowitego opadu atmosferycznego procedura przygotowania do pomiarów alfa spektrometrycznych polegała na ich spopieleniu w temperaturze 600°C , dodaniu znacznika izotopowego ^{242}Pu (niezbędnego do oceny wydajności procedury radiochemicznej oraz oszacowania aktywności), mineralizacji próbek przy pomocy kwasów HF , HNO_3 , HCl i H_3BO_3 , ustaleniu jonów plutonu na +4 stopniu utlenienia, zastosowaniu chromatografii jonowymiennej oraz wykonaniu źródeł promieniotwórczych metodą współstrącania z NdF_3 [27, 28]. Procedura ta była jednakowa dla filtrów i próbek opadu i różniła się tylko na początkowym etapie, polegającym na przygotowaniu próbek do spopielenia. W przypadku filtrów były one umieszczane bezpośrednio w parownicy (w ilości od 4 do 8 filtrów), natomiast próbkę opadu przenoszono do parownicy z pojemnika plastikowego za pomocą 1 M HNO_3 oraz wody dejonizowanej. Następnie otrzymany materiał odparowywano pod promiennikiem podczerwieni i dopiero wtedy umieszczano w piecu muflowym. Pozostałe etapy procedury były niezależne od typu próbki, zmianie podlegała jedynie objętość używanych odczynników w zależności od masy próbki otrzymanej po spopieleniu. Masy próbek po spopieleniu wahały się od kilku do kilkunastu gramów, co stanowiło ok. 5-15% ich masy początkowej. Pełny opis zastosowanej procedury radiochemicznej zamieszczono w dodatku nr 4.

2.4. Zastosowane metody spektrometrii jądrowej

Spektrometria promieniowania jądrowego to metoda pomiarowa pozwalająca na jakościową oraz ilościową analizę zawartości izotopów promieniotwórczych w badanym materiale. Za pomocą metod spektrometrii jądrowej uzyskuje się widmo energetyczne emitowanego przez próbkę promieniowania jonizującego wraz z natężeniem poszczególnych linii emisyjnych. Typowy współczesny układ pomiarowy wykorzystywany w spektrometrii jądrowej składa się z detektora promieniowania jonizującego, elektroniki rejestrującej, przetwarzającej i wzmacniającej sygnały elektryczne oraz komputera z odpowiednim oprogramowaniem umożliwiającym odczytanie oraz zanalizowanie otrzymanego widma emisyjnego. Ze względu na rodzaj rejestrowanego promieniowania rozróżnia się trzy podstawowe rodzaje spektrometrii jądrowej: spektrometrię promieniowania alfa, spektrometrię promieniowania beta oraz spektrometrię promieniowania gamma. Tak jak wspomniano w poprzednim akapicie, do pomiaru próbek środowiskowych analizowanych w ramach niniejszej pracy wykorzystano spektrometrię promieniowania alfa oraz spektrometrię promieniowania gamma, które opisano poniżej.

2.4.1. Spektrometria promieniowania gamma

Podstawy fizyczne detekcji promieniowania gamma

Promieniowanie gamma to promieniowanie elektromagnetyczne o długości fali poniżej 10^{-10}m , charakteryzujące się dużą przenikliwością i zdolnością do jonizacji atomów ośrodka, przez który przechodzi. Źródłem promieniowania gamma są procesy zachodzące w jądrach atomowych, do których należą rozpad promieniotwórczy oraz reakcje jądrowe. Pochodzenie promieniowania gamma określane, jako jądrowe jest czynnikiem pozwalającym rozróżnić je od promieniowania X, posiadającym te same własności fizyczne, będącym jednak wynikiem procesów zachodzących na poziomie powłok elektronowych w atomie.

Promieniowanie gamma emitowane podczas rozpadów promieniotwórczych, tak jak promieniowanie alfa, ma charakter dyskretny, a widmo energetyczne zarejestrowanych fotonów pozwala jednoznacznie zidentyfikować radionuklid, z którego są emitowane. W czasie rozwoju fizyki jądrowej do detekcji promieniowania gamma wykorzystywano detektory gazowe (komory jonizacyjne, liczniki proporcjonalne, liczniki Geigera-Mullera) oraz detektory scyntylacyjne (np. z kryształem NaI(Ta)), natomiast obecnie głównie wykorzystywane są detektory półprzewodnikowe (najczęściej germanowe o wysokiej czystości HPGe). Choć wymienione powyżej detektory są różnie zbudowane i posiadają inny mechanizm działania to, proces rejestracji kwantu promieniowania gamma, w każdym z nich oparty jest o zjawiska **oddziaływania promieniowania gamma z materią**. Promieniowanie gamma przechodząc przez objętość czynną detektora, może przekazać mu swoją energię poprzez jedno z następujących oddziaływań: oddziaływanie ze słabo związanymi elektronami walencyjnymi, oddziaływanie z elektronami silnie związanymi z powłok wewnętrznymi, oddziaływanie z jądrem atomowym oraz oddziaływanie z polem elektrycznym jąder i elektronów. W wyniku tych oddziaływań dochodzi do absorpcji (efekt fotoelektryczny, kreacja par) lub rozpraszania fotonów promieniowania gamma (efekt Comptona, rozpraszanie koherentne). Do najważniejszych oddziaływań z punktu widzenia spektrometrii gamma należą:

Absorbcja fotoelektryczna – zjawisko oddziaływania fotonu z silnie związanym elektronem atomowym w wyniku, którego następuje całkowite pochłonięcie padającego fotonu

oraz uwolnienie elektronu z powłoki elektronowej. Energia kinetyczna wybitego elektronu jest równa różnicy pomiędzy energią padającego fotonu, a energią wiązania elektronu na danej powłoce (wzór 50) [56].

$$E_k = h\nu - E_w - E_j \quad (50)$$

Gdzie:

E_k – energia kinetyczna fotoelektronu

$h\nu$ – energia kwantu promieniowania gamma

E_w – energia wiązania elektronu na danej powłoce

E_j – energia odrzutu atomu, której wartość jest pomijalnie mała (<0,1 eV)

Z uwagi na zasadę zachowania pędu i energii zjawisko to może zajść jedynie dla elektronów związanych w atomie, przy czym większe prawdopodobieństwo jego wystąpienia obserwuje się dla absorbentów o dużej liczbie atomowej oraz dla niskoenergetycznych kwantów promieniowania gamma (poniżej 100 keV). Atomowy przekrój czynny dla tego zjawiska wyraża się następującym wzorem (wzór 51) [56]:

$$\tau_a = \tau_0 \frac{Z^5}{(h\nu_0)^3} \left[\frac{cm^2}{atom} \right] \quad (51)$$

Gdzie:

τ_0 - współczynnik proporcjonalności

$h\nu_0$ - energia padającego kwantu promieniowania gamma

Z - liczba atomowa pierwiastka absorbentu

W wyniku absorpcji fotoelektrycznej w atomie absorbentu pozostaje wolne miejsce po wybitym elektronie, co powoduje, że cały atom przechodzi do wyższego stanu energetycznego. Powrót do stanu podstawowego następuje poprzez emisję elektronu Augera lub poprzez emisję promieniowania charakterystycznego X (zjawiska opisane w rozdziale 1 przy omawianiu procesu konwersji wewnętrznej).

Rozpraszanie Comptona- zjawisko niekoherentnego rozpraszania fotonów na elektronach walencyjnych, podczas którego padający foton przekazuje część swojej energii elektronowi słabo związanemu w atomie. W wyniku tego zjawiska, następuje zmiana energii i kierunku propagacji rozproszonego fotonu oraz emisja elektronu, który porusza się z energią kinetyczną równą (wzór 52) [56]:

$$E_e = h\nu_0 - h\nu_1 \quad (52)$$

Gdzie:

$h\nu_0$ – energia fotonu padającego

$h\nu_1$ – energia fotonu rozproszonego

Prawdopodobieństwo zajścia zjawiska Comptona maleje wraz ze wzrostem liczby atomowej Z absorbentu oraz wzrostem energii padającego promieniowania gamma. Atomowy przekrój

czynny na nieelastyczne rozpraszanie fotonów na elektronach wyraża się następującym wzorem (wzór 53):

$$\sigma_c = \sigma_e Z \left[\frac{cm^2}{atom} \right] \quad (53)$$

Gdzie:

σ_e – mikroskopowy przekrój czynny na rozpraszanie Comptona, wyznaczony teoretycznie przez Kleina i Nishine

Z – liczba atomowa pierwiastka absorbentu

Kreacja par – zjawisko powstania pary cząstek materialnych: elektronu i pozytonu kosztem energii kwantu promieniowania gamma (całkowita absorbcja fotonu). Cząstki te różnią się jedynie ładunkiem i kierunkiem momentu magnetycznego. Z uwagi na zasadę zachowania energii i pędu warunkiem koniecznym przy kreacji pary cząstka-antycząstka jest obecność pola elektrycznego jądra atomowego lub elektronu. W przypadku jądra atomowego minimalna energia kwantu promieniowania gamma potrzebna do zajścia tego zjawiska jest równa dwóm energiom spoczynkowym elektronu (wzór 54) [56]:

$$h\nu \geq 2m_0c^2 \quad (54)$$

Gdzie:

$h\nu$ – energia fotonu

$2m_0c^2$ – podwojona energia spoczynkowa elektronu równa 1,022 MeV

Zjawisko kreacji par zachodzi dla fotonów o energiach powyżej 1.022 MeV i jest bardziej prawdopodobne dla absorbentów o dużej liczbie atomowej, co przedstawia wzór 55 na atomowy przekrój czynny:

$$\kappa = \kappa_0 Z^2 \quad (55)$$

Gdzie:

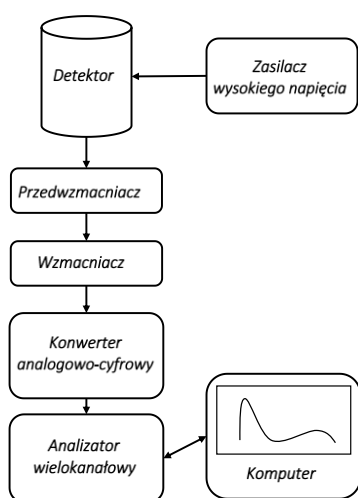
κ_0 - współczynnik zależny od energii fotonów

Z – liczba atomowa pierwiastka absorbentu

Opis toru spektrometrycznego z detektorem półprzewodnikowym HPGe

W badaniach prowadzonych w ramach niniejszej rozprawy do pomiarów promieniowania gamma wykorzystano spektrometry z półprzewodnikowymi detektorami germanowymi HPGe. Budowa detektora półprzewodnikowego opiera się na złączu p-n spolaryzowanym zaporowo, a jego działanie tłumaczy się za pomocą pasmowej teorii przewodnictwa elektrycznego. Objętość czynną detektora półprzewodnikowego stanowi tzw. obszar zubożony powstały na styku warstw typu p i typu n. Kwant promieniowania gamma przechodząc przez objętość czynną detektora, za pośrednictwem opisanych powyżej oddziaływań, przekazuje swoją energię elektronom z pasma walencyjnego, które przechodzą następnie do pasma przewodnictwa. Jednocześnie uwolnione elektrony zostawiają po sobie dodatnio naładowane luki w pasmie walencyjnym zwane dziurami. Po przyłożeniu zewnętrznego pola elektrycznego do złącza p-n, wygenerowane nośniki ładunku elektrycznego wędrują do odpowiednich elektrod. Wytworzony w ten sposób prąd elektryczny przepływa przez załączony do obwodu rezystor, co powoduje powstanie na nim spadku potencjału, tj. impulsu napięciowego. Amplituda wygenerowanego impulsu jest proporcjonalna do energii zdeponowanej przez foton w objętości czynnej detektora. Uzyskany z rezystora sygnał napięciowy jest następnie wzmacniany za pomocą przedwzmacniacza i wzmacniacza oraz

analizowany w wielokanałowym analizatorze amplitudy. Głównym elementem wielokanałowego analizatora amplitudy jest przetwornik analogowo-cyfrowy, w którym następuje konwersja amplitudy sygnału napięciowego do postaci skwantowanej (liczbowej). W zależności od wysokości zarejestrowanego impulsu jest on przyporządkowany do odpowiedniego kanału (fizycznie odpowiedniej komórki pamięci). W wyniku pomiaru otrzymuje się widmo przedstawiające liczbę zliczeń, tj. liczbę zarejestrowanych w detektorze kwantów gamma, w funkcji energii. Widmo to można odczytać i zanalizować za pomocą dedykowanego, komercyjnego oprogramowania takiego jak Genie 2000 Basic Spectroscopy Software firmy Canberra lub wykorzystując samodzielnie napisaną aplikację. Przy opracowywaniu widm gamma spektrometrycznych do celów niniejszej pracy wykorzystano oprogramowanie PIMP [62]. Poniżej schemat ideowy toru spektrometrycznego z detektorem półprzewodnikowym HPGe (rysunek 12).



Rysunek 12. Tor spektrometryczny z detektorem HPGe.

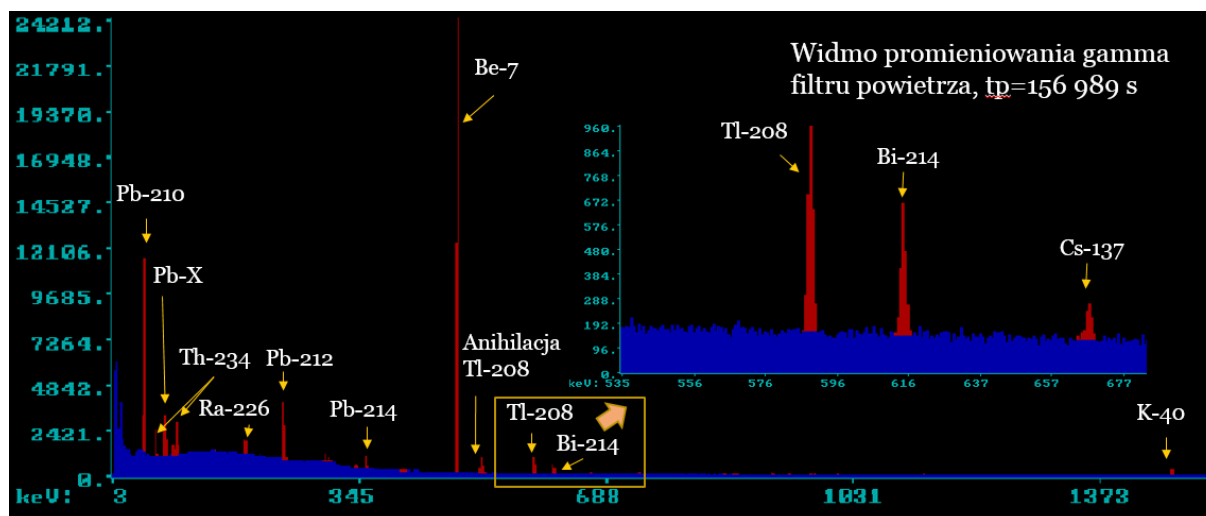
Istotnym elementem przedstawionego powyżej toru spektrometrycznego jest system chłodzenia detektora HPGe, który zawiera naczynie Dewara wypełnione ciekłym azotem. Zadaniem systemu jest ciągle utrzymywanie diody detektora w temperaturze bliskiej temperaturze wrzenia ciekłego azotu ($-196\text{ }^{\circ}\text{C}$, $\sim 77\text{ K}$). W przypadku spektrometru z detektorem germanowym o wysokiej czystości chłodzenie układu jest konieczne jedynie podczas pracy detektora. Potrzeba chłodzenia detektorów półprzewodnikowych wynika z istnienia tzw. prądu upływu, który jest wynikiem drgań termicznych sieci krystalicznej półprzewodnika. Energia drgań, będąca wprost proporcjonalna do temperatury detektora, może umożliwić elektronom z pasma walencyjnego przeskok do pasma przewodnictwa. W ten sposób generowany jest przepływ ładunku elektrycznego niezależny od procesu rejestracji kwantów promieniowania gamma padających na detektor.

Innym ważnym elementem rozważanego układu pomiarowego jest system osłon biernych lub czynnych służący do zminimalizowania tła promieniotwórczego wokół detektora. Jako osłony bierne wykorzystuje się materiały o dużej liczbie atomowej (takie jak ołów, miedź, kadm, żelazo) o odpowiednio dobranej grubości i niskiej zawartości naturalnych izotopów promieniotwórczych. Ich celem jest redukcja sygnałów nie pochodzących od próbki tj. będących wynikiem m.in. rozpadu substancji promieniotwórczych zawartych w glebie, w powietrzu oraz w materiałach konstrukcyjnych spektrometru, rozproszonego promieniowania emitowanego przez próbkę, kwantów promieniowania X emitowanych przez wzbudzone atomy osłon, oraz promieniowania

gamma będącego wynikiem reakcji jądowych zachodzących w materiałach konstrukcyjnych spektrometru (głównie z udziałem mionów i neutronów). W ramach redukcji tła promieniotwórczego oprócz biernych osłon przed promieniowaniem stosuje się również układy elektroniczne, zwykle z detektorami scyntylacyjnymi, działające w trybie antykoincydencji. Służą one do redukcji tła pochodzącego od kwantów promieniowania gamma rozproszonych w zjawisku Comptona (osłony antykomptonowskie) oraz wysokoenergetycznych fotonów emitowanych w wyniku reakcji mionów pochodzących z promieniowania kosmicznego z materiałem osłony [57].

Widmo promieniowania gamma

Wynikiem pomiaru promieniowania gamma emitowanego przez próbkę wykonanego przy użyciu spektrometru jądowego jest widmo emisyjne, przedstawiające rozkład liczby zliczeń dla poszczególnych linii emisyjnych w funkcji energii. Poniżej przykładowe widmo zmierzone dla filtru powietrza i zanalizowane przy pomocy programu PIMP [62] (rysunek 13). Czas pomiaru t_p wynosił 156 989 s. Na osi Y odłożona jest liczba zliczeń (zarejestrowanych kwantów gamma), a na osi X energia promieniowania wyrażona w kiloelektronowoltach [keV]. Na widmie można wyróżnić m.in. linie pochodzące od naturalnych ziemskich izotopów promieniotwórczych (np. Pb-210, Bi-214, K-40), izotopów kosmogenicznych (np. Be-7) oraz sztucznych izotopów promieniotwórczych (np. Cs-137).



Rysunek 13. Widmo promieniowania gamma uzyskane dla tygodniowej próbki aerozoli atmosferycznych.

Kalibracja energetyczna i wydajnościowa spektrometru

Celem przedstawienia widma emisyjnego w postaci zależności liczby zliczeń kwantów gamma od ich energii należy wykonać kalibrację energetyczną spektrometru. Polega ona na pomiarze widma jednego lub kilku znanych radionuklidów emitujących fotony o dobrze określonych energiach, a następnie wyznaczeniu zależności energii rejestrowanych kwantów promieniowania od numerów kanałów analizatora, którym zostały one przyporządkowane w procesie detekcji. Informacja o energiach zarejestrowanych linii emisyjnych pozwala na

wykonanie analizy jakościowej zawartości izotopów promieniotwórczych w badanej próbce. W celu wykonania analizy ilościowej oprócz kalibracji energetycznej należy również wykonać kalibrację wydajnościową spektrometru. Wydajność spektrometru jest to stosunek liczby fotonów o danej energii zarejestrowanych przez spektrometr do liczby fotonów o tej energii wyemitowanych przez mierzoną próbkę. Aby ją wyznaczyć należy zmierzyć widmo wzorca, czyli próbki o znanej zawartości izotopów promieniotwórczych. Wydajność spektrometru w danej geometrii oblicza się wg wzoru 56 [58]:

$$\varepsilon(E) = \frac{n(E)}{p(E) \cdot A \cdot t} \quad (56)$$

Gdzie:

$n(E)$ – liczba kwantów gamma o energii E zarejestrowanych przez detektor [j. bezw.]

$p(E)$ – prawdopodobieństwo emisji kwantu gamma o energii E podczas rozpadu promieniotwórczego [j. bezw.]

A – aktywność radionuklidu emitującego kwanty gamma o energii E w dniu pomiaru [Bq]

t – czas pomiaru [s]

W celu pomiaru promieniowania gamma emitowanego przez próbki aerozoli atmosferycznych oraz próbki całkowitego opadu atmosferycznego, które były przedmiotem badań prowadzonych w ramach niniejszej pracy, wyznaczono wydajności dla geometrii pojedynczego (1FP) oraz podwójnego (2FP) filtra powietrza, dla każdego wykorzystywanego spektrometru promieniowania gamma. Do tego celu wykorzystano źródło objętościowe multigamma mające rozmiary geometryczne sprasowanego filtra powietrza, a więc będące krążkiem o średnicy 50 mm i grubości 5 mm. Część aktywną źródła stanowił roztwór promieniotwórczy rozprowadzony w żywicy epoksydowej. W tabeli 16 przedstawiono izotopy wraz z aktywnościami wchodzące w skład źródła wzorcowego.

Tabela 16. Wykaz izotopów źródła wzorcowego.

Radionuklid	Aktywność [kBq]	Data referencyjna
²⁴¹ Am	7,18 ± 0,25	01.10.2010 godz. 12.00 CWE
¹⁰⁹ Cd	19,3 ± 0,7	
⁵⁷ Co	0,82 ± 0,03	
⁵¹ Cr	7,78 ± 0,27	
¹¹³ Sn	2,64 ± 0,09	
⁸⁵ Sr	3,98 ± 0,14	
¹³⁷ Cs	4,06 ± 0,14	
⁵⁴ Mn	5,84 ± 0,20	
⁶⁵ Zn	10,0 ± 0,4	
⁶⁰ Co	9,81 ± 0,34	

Wyznaczenie aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach

Procedura wyznaczania aktywności, stężenia aktywności oraz depozycji aktywności izotopów ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K zawartych w próbkach filtrów powietrza oraz w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego składała się z następujących elementów:

1. Pomiar tła promieniotwórczego spektrometru
 - a) Odczytanie liczby zliczeń tła wraz z niepewnością I, dI dla każdej rozważanej linii emisyjnej
 - b) Normalizacja liczby zliczeń tła na czas pomiaru widma próbki. Po normalizacji otrzymujemy liczbę zliczeń tła wraz z niepewnością I_c, dI_c , które są używane w późniejszych obliczeniach (wzór 57). Wszystkie niepewności złożone wyznaczone zostały z prawa przenoszenia niepewności pomiarowej (wzór 58).

$$I_c = I \cdot \frac{t_p}{t_t} \quad (57)$$

$$dI_c = \sqrt{(dI \frac{t_p}{t_t})^2 + (-dt_t \frac{I t_p}{t_t^2})^2 + (dt_p \frac{I}{t_t})^2} \quad (58)$$

Niepewność czasu pomiaru widma próbki t_p i tła t_t przyjęto w zależności od rodzaju spektrometru, jako 1 s lub 60 s.

2. Pomiar próbki
 - a) Odczytanie liczby zliczeń wraz z niepewnością N, dN dla każdej rozważanej linii emisyjnej
 - b) Wyznaczenie liczby zliczeń netto wraz z niepewnością S, dS , tj. liczby zliczeń po odjęciu tła promieniotwórczego (wzory 59, 60):

$$S = N - I_c \quad (59)$$

$$dS = \sqrt{dN^2 + dI_c^2} \quad (60)$$

3. Zastosowanie poprawek
 - a) K_s - poprawka na rozpad promieniotwórczy, który zachodzi podczas trwania poboru próbek (wzór 61) (58)

$$K_s = \frac{\lambda t_s}{(1 - e^{-\lambda t_s})} \quad [j. bezw.] \quad (61)$$

t_s – czas poboru próbki

- b) K_w - poprawka na rozpad, który zachodzi od momentu zakończenia poboru do momentu rozpoczęcia pomiaru widma (wzór 62) [58]

$$K_w = e^{\lambda t_w} \quad [j. bezw.] \quad (62)$$

t_w – czas jaki upłynął między zakończeniem poboru, a rozpoczęciem pomiaru widma

- c) K_c poprawka na rozpad, który zachodzi podczas trwania pomiaru widma (wzór 63) [58]

$$K_c = \frac{\lambda t_p}{(1 - e^{-\lambda t_p})} \quad [j. bezw.] \quad (63)$$

t_p – czas pomiaru widma

4. Obliczenie aktywności, stężenia aktywności oraz depozycji aktywności wraz z niepewnościami rozważanego radionuklidu w próbce (wzory 64-69)

$$A = \frac{S}{p(E) \cdot \varepsilon(E) \cdot t_p} K_c K_w K_s \quad [Bq] \quad (64)$$

$$dA = A \sqrt{\left(\frac{dS}{S}\right)^2 + \left(\frac{dt_p}{t_p}\right)^2 + \left(\frac{d\varepsilon(E)}{\varepsilon(E)}\right)^2} \quad [Bq] \quad (65)$$

$$A_c = \frac{S}{p(E) \cdot \varepsilon(E) \cdot V \cdot t_p} K_c K_w K_s \quad \left[\frac{Bq}{m^3}\right] \quad (66)$$

$$dA_c = A_c \sqrt{\left(\frac{dS}{S}\right)^2 + \left(\frac{dV}{V}\right)^2 + \left(\frac{dt_p}{t_p}\right)^2 + \left(\frac{d\varepsilon(E)}{\varepsilon(E)}\right)^2} \quad \left[\frac{Bq}{m^3}\right] \quad (67)$$

$$A_D = \frac{S}{p(E) \cdot \varepsilon(E) \cdot D \cdot t_p} K_c K_w K_s \quad \left[\frac{Bq}{m^2}\right] \quad (68)$$

$$dA_D = A_D \sqrt{\left(\frac{dS}{S}\right)^2 + \left(\frac{dD}{D}\right)^2 + \left(\frac{dt_p}{t_p}\right)^2 + \left(\frac{d\varepsilon(E)}{\varepsilon(E)}\right)^2} \quad \left[\frac{Bq}{m^2}\right] \quad (69)$$

Gdzie:

V – objętość próbki [m^3]

dV – niepewność objętości próbki (przyjęta jako 5% z wartości V dla próbek

aerozoli atmosferycznych oraz jako 0,002 m^3 dla próbek opadu całkowitego) [m^3]

$d\varepsilon(E)$ – niepewność wydajności spektrometru przyjęta jako 5% z wartości ε [j. bezw.]

D – powierzchnia kolektora [m^2]

dD – niepewność powierzchni kolektora liczona jako niepewność złożona,

gdzie niepewność pojedynczego boku kolektora wynosiła 0,01 m^2 [m^2]

5. Wyznaczenie minimalnej mierzalnej aktywności, stężenia aktywności oraz depozycji aktywności

W celu wyznaczenia minimalnej mierzalnej aktywności skorzystano ze wzoru Currie [29, 59], który zastosowano do danych pomiarowych otrzymanych za pomocą programu PIMP (wzory 70-72):

$$MDA = [2,706 + 2 \cdot 1,645 \cdot \sqrt{dS^2 - S}] \frac{K_c \cdot K_w \cdot K_s}{p(E) \cdot \varepsilon(E) \cdot t_p} \quad [Bq] \quad (70)$$

$$MDC = [2,706 + 2 \cdot 1,645 \cdot \sqrt{dS^2 - S}] \frac{K_c \cdot K_w \cdot K_s}{p(E) \cdot \varepsilon(E) \cdot V \cdot t_p} \quad \left[\frac{Bq}{m^3}\right] \quad (71)$$

$$MDD = [2,706 + 2 \cdot 1,645 \cdot \sqrt{dS^2 - S}] \frac{K_c \cdot K_w \cdot K_s}{p(E) \cdot \varepsilon(E) \cdot D \cdot t_p} \quad \left[\frac{Bq}{m^2}\right] \quad (72)$$

Gdzie:

MDA – minimalna mierzalna aktywność

MDC – minimalne mierzalne stężenie aktywności

MDD – minimalna mierzalna depozycja aktywności

2.4.2. Spektrometria promieniowania alfa

Podstawy fizyczne detekcji promieniowania alfa

Cząstki alfa, czyli jądra ${}^4_2\text{He}$ to ciężkie cząstki naładowane dodatnio emitowane podczas rozpadów alfa promieniotwórczych (opisanych w rozdziale I), które oddziałują z materią bezpośrednio poprzez oddziaływania kulombowskie oraz oddziaływania silne. Przechodząc przez ośrodek mogą one zjonizować napotkane atomy, wzbudzić je, rozproszyć się elastycznie na jądrach atomowych, wzbudzić jądra atomowe lub brać udział w reakcjach jądrowych. Z punktu widzenia detekcji promieniowania alfa najważniejszym zjawiskiem jest jonizacja atomów ośrodka. Podczas nieelastycznych zderzeń z elektronami atomowymi cząstki alfa tracą swoją energię stopniowo nieznacznie zmieniając przy tym tor ruchu. Cechą charakterystyczną zjawiska absorpcji promieniowania alfa w materii jest jego zasięgowość. Zasięg cząstek alfa w materii, czyli maksymalna droga, jaką są w stanie pokonać zależy do ich energii początkowej oraz rodzaju absorbentu: zwiększa się wraz ze wzrostem energii kinetycznej cząstek i zmniejsza wraz ze wzrostem gęstości ośrodka. Straty energii kinetycznej cząstki alfa na jednostkę drogi można opisać za pomocą wzoru Bethego-Blocha [60]. Wynika z niego, że maksimum gęstości jonizacji materii występuje w okolicach zasięgu, tworząc tzw. pik Bragga (wzór 73).

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi N_A Z \rho}{A m_m m_e c^2} \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right) \frac{z^2}{\beta^2} \left[\frac{1}{2} \ln\left(\frac{2m_e c^2 \beta^2 T_{max}}{(1-\beta^2)^2}\right) - \beta^2 - \frac{\delta}{2}\right] \quad (73)$$

Gdzie:

$\frac{dE}{dx}$ – zmiana energii na jednostkę drogi

N_A – stała Avogadra

Z – liczba atomowa absorbentu

A – liczba masowa absorbentu

ρ – gęstość absorbentu

m_m – masa molowa absorbentu

m_e – masa elektronu

$c, V, \beta = \frac{v}{c}$ – szybkość światła w próżni, szybkość cząstki, stosunek szybkości

e – ładunek elektronu

z – ładunek cząstki w jednostkach e

ϵ_0 – przenikalność elektryczna próżni

I – średnia energia jonizacji

$\frac{\delta}{2}$ – poprawka na gęstość pola

T_{max} – maksymalna energia kin., która może zostać przekazana w pojedynczym zderzeniu

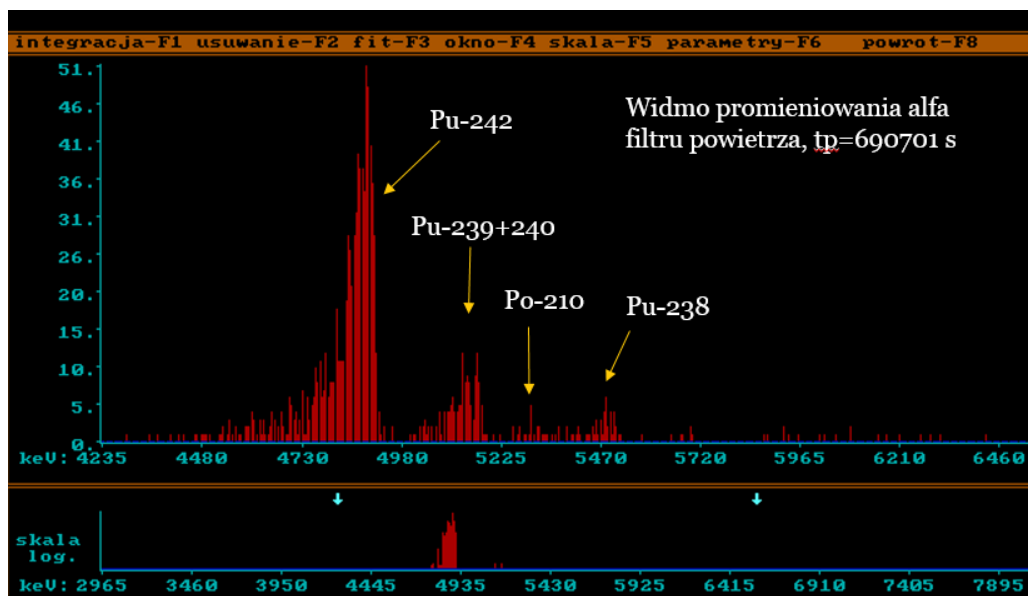
Opis toru spektrometrycznego z detektorem półprzewodnikowym krzemowym

Tor spektrometryczny służący do pomiaru promieniowania alfa składa się z podobnych elementów, co tor spektrometru gamma tj. z detektora, przedwzmacniacza, wzmacniacza, konwertera analogowo-cyfrowego, analizatora wielokanałowego oraz komputera z odpowiednim oprogramowaniem. Podstawową różnicą jest rodzaj zastosowanego detektora – w przypadku spektrometrów alfa zwykle stosuje się detektory krzemowe implantowane odpowiednimi domieszkami (według nomenklatury firmy Canberra, z j. ang. Passivated Implanted Planar Silicon - PIPS). Aby ograniczyć straty energii kinetycznej cząstek alfa przed ich dotarciem do licznika, w komorze detektora podczas pomiaru utrzymywana jest niska próżnia (ok. 0,02 mbar), a samo źródło promieniotwórcze przygotowywane jest z próbki po uprzednim wydzieleniu badanych pierwiastków z jej matrycy. Odległość między źródłem promieniotwórczym, a powierzchnią detektora jest tak dobrana, by z jednej strony do objętości czynnej licznika dotarło jak najwięcej cząstek alfa (im mniejsza odległość tym wyższa wydajność detektora), a z drugiej strony by zarejestrowane cząstki były jak najbardziej monoenergetyczne (im większa odległość tym wyższa rozdzielczość detektora) [57]. W przypadku prezentowanych tu pomiarów, z racji badanych niskich aktywności, wykorzystywano bliską geometrię maksymalizującą wydajność rejestracji kosztem zdolności rozdzielczej.

Do pomiaru próbek będących przedmiotem pracy wykorzystano 13 torów spektrometrycznych alfa, z czego 1 znajdował się w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN, a pozostałe 12 w Zakładzie Geologii i Wód Mineralnych na Wydziale Geoinżynierii, Górnictwa i Geologii Politechniki Wrocławskiej.

Widmo promieniowania alfa

Tak jak w przypadku promieniowania gamma, widmo promieniowania alfa przedstawia rozkład częstości linii emisyjnych w funkcji energii. Na rysunku 14 przedstawiono przykładowe widmo zestawu filtrów powietrza opracowane w programie ALF [62]. Czas pomiaru t_p wynosił 690 701 s. Na widmie można wyróżnić linię emisyjną pochodzącą od znacznika tj. ^{242}Pu , linie emisyjne pochodzące od izotopów plutonu zawartych w próbce tj. $^{238+240}\text{Pu}$ oraz ^{238}Pu oraz linię emisyjną pochodzącą od ^{210}Po , będącego produktem rozpadu ^{210}Pb występującego w próbkach w znacznie większej aktywności od izotopów plutonu i pojawiające się w widmie na skutek skończonej wydajności rozdzielczą.



Rysunek 14. Widmo promieniowania alfa czterotygodniowej próbki aerozoli atmosferycznych.

Kalibracja energetyczna i wydajnościowa spektrometru

Kalibracja energetyczna detektorów promieniowania alfa wykonana została tą samą metodą, co kalibracja energetyczna detektorów gamma. Z kolei kalibracja wydajnościowa spektrometrów promieniowania alfa, pozwalająca na wyznaczenie efektywności rejestracji cząstek alfa θ , posłużyła do wyznaczenia chemicznej wydajności procedury Y dla każdej analizowanej próbki. W celu wyznaczenia aktywności izotopów alfa promieniotwórczych posłużono się metodą względną, opisaną poniżej.

Wyznaczenie aktywności izotopów alfa promieniotwórczych zawartych w próbkach

1. Wyznaczenie masy dodanego znacznika

Do każdej próbki przed procesem mineralizacji dodawano za pomocą pipety automatycznej 25 μl znacznika ^{242}Pu . Stwierdzono, że powtarzalność pipetowania mieści się w zakresie ok. $\pm 8\%$ objętości. W celu dokładniejszego pomiaru ilości dodanego znacznika, za każdym razem ważono roztwór znacznika przed i po dodaniu do próbki. Podczas badań korzystano z trzech przygotowanych roztworów znacznika, w których stężenie aktywności ^{242}Pu wynosiło 0,1412 Bq/g, 0,1305 Bq/g oraz 0,1411 Bq/g. Niepewność pojedynczego pomiaru masy znacznika przyjęto, jako 0,0001 g na podstawie aktualnego świadectwa wzorcowania używanej wagi elektronicznej (wzory 74,75).

m_1 – masa znacznika przed dodaniem

m_2 – masa znacznika po dodaniu

m – masa znacznika dodanego do próbki

dm – niepewność masy dodanego znacznika

$$dm_1 = 0,0001 [g]$$

$$dm_2 = 0,0001 [g]$$

$$m = m_1 - m_2 [g] \quad (74)$$

$$dm = \sqrt{dm_1^2 + dm_2^2} [g] \quad (75)$$

2. Wyznaczenie aktywności znacznika

Znając masę oraz stężenie aktywności dodanego znacznika wyznaczano jego aktywność. Niepewność aktywności liczona była przy pomocy prawa przenoszenia niepewności pomiarowej. W obliczeniach pominięto niepewność stężenia aktywności znacznika w roztworze (wzory 76,77).

C_{zn} – stężenie aktywności znacznika $[\frac{Bq}{g}]$

A_{zn} – aktywność znacznika dodana do próbki [Bq]

$$A_{zn} = C_{zn} \cdot m [Bq] \quad (76)$$

$$dA_{zn} = C_{zn} \cdot dm [Bq] \quad (77)$$

3. Wyznaczenie aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach

Aktywność izotopów plutonu zawartych w badanych próbkach wyznaczono za pomocą metody względnej, tj. poprzez porównanie liczby zliczeń odpowiadających pikowi znacznika oraz liczby zliczeń zarejestrowanych w pikach poszukiwanych izotopów w próbce. Jako tło promieniotwórcze, do obliczeń wykorzystano wyniki analizy widm tzw. blanków, czyli źródełek promieniotwórczych wykonanych ze ślepych prób (wzory 78-83).

N_{zn} – liczba zliczeń w pikcie znacznika w mierzonej próbce

N_x – liczba zliczeń w pikcie dla badanego izotopu w mierzonej próbce

dN_{zn} – niepewność liczby zliczeń w pikcie znacznika w mierzonej próbce, odczytana z widma

dN_x – niepewność liczby zliczeń w pikcie badanego izotopu w mierzonej próbce, odczytana z widma

t – czas pomiaru widma próbki

dt – niepewność czasu pomiaru widma próbki

N_t – liczba zliczeń w pikcie dla danego izotopu w widmie tła

t_t – czas pomiaru widma tła

dt_t – niepewność czasu pomiaru tła

cps – liczba zliczeń na sekundę (z j. ang. counts per second)

$$dt = 1 [s]$$

$$dt_t = 1 [s]$$

$$dN_{zn} [j. \text{bezw.}]$$

$$dN_x [j. \text{bezw.}]$$

$$cps_{zn\ netto} = \frac{N_{zn}}{t} - \frac{N_t}{t_t} \left[\frac{1}{s} \right] \quad (78)$$

$$dcps_{zn\ netto} = \sqrt{\left(-\frac{N_{zn}}{t^2} dt\right)^2 + \left(\frac{dN_{zn}}{t}\right)^2 + \left(\frac{N_t}{t_t^2} dt_t\right)^2 + \left(-\frac{dN_t}{t_t}\right)^2} \left[\frac{1}{s} \right] \quad (79)$$

$$cps_{x\ netto} = \frac{N_x}{t} - \frac{N_t}{t_t} \left[\frac{1}{s} \right] \quad (80)$$

$$dcps_{x\ netto} = \sqrt{\left(-\frac{N_x}{t^2} dt\right)^2 + \left(\frac{dN_x}{t}\right)^2 + \left(\frac{N_t}{t_t^2} dt_t\right)^2 + \left(-\frac{dN_t}{t_t}\right)^2} \left[\frac{1}{s} \right] \quad (81)$$

$$A_x = A_{zn} \cdot \frac{cps_{x\ netto}}{cps_{zn\ netto}} [Bq] \quad (82)$$

$$dA_x = \sqrt{\left(dA_{zn} \frac{cps_{x\ netto}}{cps_{zn\ netto}}\right)^2 + \left(\frac{A_{zn} \cdot dcps_{x\ netto}}{cps_{zn\ netto}}\right)^2 + \left(-\frac{A_{zn} \cdot cps_{x\ netto} \cdot dcps_{zn\ netto}}{cps_{zn\ netto}^2}\right)^2} [Bq] \quad (83)$$

4. Wyznaczenie stężenia oraz depozycji aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach

Depozycja aktywności dla próbek całkowitego opadu atmosferycznego wyznaczana była dla powierzchni czerpni do zbierania całkowitego opadu atmosferycznego.

Stężenie aktywności dla próbek aerozoli atmosferycznych wyznaczane było dla sumarycznej objętości powietrza, która przepłynęła przez filtry powietrza stanowiące pojedynczą próbkę, natomiast stężenie aktywności dla próbek całkowitego opadu atmosferycznego wyznaczane było dla objętości opadów atmosferycznych zebranych w pojedynczym okresie próbkowania (wzory 84-87).

V – objętość pobranej próbki opadu/powietrza

S – powierzchnia kolektora do poboru całkowitego opadu atmosferycznego

t – czas pomiaru widma próbki

C_x – stężenie aktywności danego izotopu w próbce opadów/powietrza

D_x – depozycja aktywności danego izotopu

w próbce całkowitego opadu atmosferycznego

dV_{filtra} – niepewność objętości powietrza, liczona jako niepewność złożona

$dV_{opadów}$ – niepewność objętości opadów

$dS_{opadów}$ – niepewność powierzchni kolektora

dV_{filtra} – niepewność złożona [m^3]

$$dV_{opadów} = 0,002 [m^3]$$

$$dS_{opadów} = 0,021 [m^2]$$

$$C_x = \frac{A_x}{V} \left[\frac{Bq}{m^3} \right] \quad (84)$$

$$dC_x = \sqrt{\left(\frac{dA_x}{V}\right)^2 + \left(-\frac{A_x dV}{V^2}\right)^2} \left[\frac{Bq}{m^3} \right] \quad (85)$$

$$D_x = \frac{A_x}{S} \left[\frac{Bq}{m^2} \right] \quad (86)$$

$$dD_x = \sqrt{\left(\frac{dA_x}{S}\right)^2 + \left(-\frac{A_x dS}{S^2}\right)^2} \left[\frac{Bq}{m^2} \right] \quad (87)$$

5. Wyznaczenie wydajności chemicznej procedury dla każdej analizowanej próbki (wzory 88,89)

$$Y = \frac{cpszn\ netto}{A_{zn} \cdot \theta} [j. bezw.] \quad (88)$$

$$dY = \sqrt{\left(\frac{dcpszn\ netto}{A_{zn} \cdot \theta}\right)^2 + \left(-\frac{cpszn\ netto \cdot dA_{zn}}{\theta \cdot A_{zn}^2}\right)^2 + \left(-\frac{cpszn\ netto \cdot d\theta}{A_{zn} \cdot \theta^2}\right)^2} [j. bezw.] \quad (89)$$

Y – wydajność chemiczna

θ – efektywność rejestracji cząstek alfa dla danego detektora

i określonej geometrii pomiaru (38% dla detektorów wykorzystanych w pracy) [j. bezw.]

$d\theta$ – niepewność efektywności detektora przyjęta jako 2%

Aby wyznaczyć θ skorzystano z metody kolejnego współstrącania z NdF_3 [57]. W tym celu przygotowano roztwór o znanej aktywności znacznika Pu-242 i kolejno, podwójnie go strącono uzyskując dwa źródła promieniotwórcze. Następnie skorzystano ze wzoru 90 [57]:

$$\theta = \frac{N_1}{A_{zn} \left(1 - \frac{N_2}{N_1}\right)} \quad (90)$$

Gdzie:

N_1 – liczba zliczeń netto w źródle po pierwszym strąceniu

N_2 – liczba zliczeń netto w źródle po drugim strąceniu

6. Wyznaczenie minimalnej mierzalnej aktywności, stężenia aktywności oraz depozycji aktywności

W celu wyznaczenia minimalnej mierzalnej aktywności skorzystano ze wzoru Currie [28], który zastosowano do danych pomiarowych otrzymanych za pomocą programu ALF (wzory 91-101):

N_x – liczba zliczeń w pikie dla badanego izotopu w mierzonej próbce

t – czas pomiaru widma próbki

N_t – liczba zliczeń w pikie o energii odpowiadającej energii linii emisyjnej dla danego izotopu w widmie tła

N_t' – liczba zliczeń tła wyznaczona na czas pomiaru widma próbki

t_t – czas pomiaru widma tła

L_D – limit detekcji

L_C – limit krytyczny

k_α – współczynnik rozszerzenia, wybrany dla prawdopodobieństwa

popętnienia błędu I rodzaju równego 0,05
 k_β – współczynnik rozszerzenia, wybrany dla prawdopodobieństwa
 popętnienia błędu II rodzaju równego 0,05

$$N_t' = N_t \cdot \frac{t}{t_t} \quad (91)$$

$$dN_t' = \sqrt{(dN_t \frac{t}{t_t})^2 + (-dt_t \frac{N_t \cdot t}{t_t^2})^2 + (dt \frac{N_t}{t_t})^2} \quad (92)$$

$$L_C = k_\alpha \sqrt{2B + N_t' + dN_t'^2} \quad (93)$$

$$B = \frac{dN_x^2 - N_x}{2} \quad (94)$$

$$k_\alpha = 1,645 \quad (95)$$

$$k_\alpha = k_\beta = 1,645 \quad (96)$$

$$L_D = k^2 + 2 \cdot L_C = 2,706 + 4,65 \cdot \sqrt{N_t'} \text{ [j.bezw.]} \quad (97)$$

$$L_D = k^2 + 2 \cdot L_C = 2,706 + 4,65 \cdot \sqrt{N_t \cdot \frac{t}{t_t}} \text{ [j.bezw.]} \quad (98)$$

$$MDA = \frac{L_D}{\theta \cdot Y \cdot t} = \frac{1}{\theta \cdot Y} \left(\frac{2,706}{t} + 4,65 \cdot \frac{\sqrt{N_t}}{\sqrt{t \cdot t_t}} \right) \text{ [Bq]} \quad (99)$$

$$MDC = \frac{L_D}{\theta \cdot Y \cdot t \cdot V} \text{ [Bq/m}^3\text{]} \quad (100)$$

$$MDD = \frac{L_D}{\theta \cdot Y \cdot t \cdot S} \text{ [Bq/m}^2\text{]} \quad (101)$$

7. Wyznaczenie stężenia aktywności w próbkach materiału referencyjnego IAEA 375 w celu sprawdzenia poprawności zastosowanej metody radiochemicznej.

W granicach niepewności rozszerzonej, stężenia aktywności izotopów plutonu uzyskane z 4 zmierzonych próbek były równe wartościom referencyjnym. Szczegółowe wyniki przedstawia tabela 17.

Tabela 17. Stężenia aktywności izotopów Pu-238 i Pu-239+240 w materiale referencyjnym IAEA-375.

Radionuklid	Wartość referencyjna [Bq/kg]	95 % Przedział ufności	Wartość obliczona ¹ [Bq/kg]	Niepewność [Bq/kg]
Pu-238	0,071	0,056-0,085	0,049	0,009
			0,051	0,011
			0,111	0,014
			0,084	0,012
			Średnia	Odch. standardowe
			0,075	0,015
Pu-239+240	0,30	0,26-0,34	0,22	0,02
			0,24	0,02
			0,35	0,03
			0,26	0,03
			Średnia	Odch. standardowe
			0,27	0,03

¹ Dla Pu-238 wartość skorygowana na dzień referencji (31.12.1991)

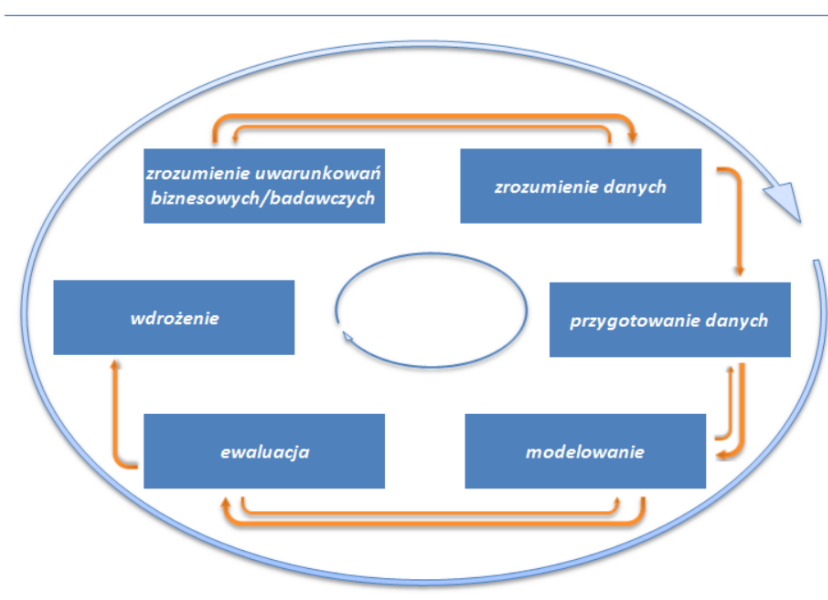
2.5. Metody eksploracji danych

Eksploracja danych (z j. ang. Data Mining) jest procesem służącym do odkrywania wiedzy z dużych zbiorów danych przy użyciu różnych technik takich jak uczenie maszynowe, sieci neuronowe, sieci bayesowskie, reguły asocjacyjne, wizualizacja danych oraz analiza statystyczna. Podstawowym celem eksploracji danych jest analiza deskryptywna, eksplanacyjna oraz predykcyjna badanego zjawiska. Aby wyciągnąć wartościowe wnioski z przeprowadzonych analiz, eksplorację danych należy traktować, jako proces, w którym kolejność wykonywania poszczególnych etapów powinna być zachowana. Jednym z najbardziej popularnych modeli służących do opisu procesu eksploracji danych jest CRISP-DM (z j. ang. Cross-Industry Standard Process for Data Mining), którego elementy zostały wykorzystane w analizie danych pomiarowych przeprowadzonej w ramach tej rozprawy. Cykl życia procesu eksploracji danych zgodnie z modelem CRISP-DM składa się z 6 etapów [78]:

- 1. Zrozumienie uwarunkowań badawczych**
 - 1.1. Sformułowanie celów
 - 1.2. Identyfikacja ograniczeń
 - 1.3. Ustalenie wstępnego planu działań
- 2. Zrozumienie danych:**
 - 2.1. Zebranie danych
 - 2.2. Wstępna analiza danych
 - 2.3. Ocena jakości danych
- 3. Przygotowanie danych:**
 - 3.1. Czyszczenie danych
 - 3.2. Obsługa brakujących danych
 - 3.3. Przekształcenie danych (normalizacja, zmiana rozdzielczości)

4. Modelowanie
5. Interpretacja znalezionych regularności
6. Wdrożenie/wykorzystanie odkrytej wiedzy

Kluczową fazą modelu CRISP-DM, jak również każdego innego modelu procesu eksploracji danych jest odpowiednie przygotowanie danych do dalszych analiz. Jest to najbardziej czasochłonny i pracochłonny etap, którego wyniki zgodnie z regułą GIGO (z j. ang. Garbage In, Garbage Out, mówiącą, że dobrze wykonane analizy złych danych doprowadzą do złych wyników) determinują wiarygodność otrzymanych w wyniku eksploracji wzorców, trendów i zależności. W modelu CRISP-DM cykl życia procesu ma charakter iteracyjny – często zdarza się, że z etapu modelowania powraca się do etapu przygotowania danych, lub po zakończeniu cyklu i sformułowaniu wniosków podejmuje się decyzję o konieczności zrewidowania założonych celów badawczych i ponownym przeprowadzeniu procesu eksploracji (rysunek 15).



Rysunek 15. Model procesu eksploracji danych CRISP-DM. [79]

Proces eksploracji danych pomiarowych stężenia i depozycji aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych zawartych w badanych próbkach w oparciu o model CRISP-DM

FAZA 1: zrozumienie uwarunkowań badawczych

Przedmiotem badań był wieloletni zestaw danych będący wynikiem pomiarów aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych oraz w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Celem eksploracji było:

- wyznaczenie zawartości izotopów ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K w przygruntowej warstwie powietrza oraz w całkowitym opadzie atmosferycznym
- wykrycie korelacji wzajemnych, w szczególności sezonowych między wybranymi izotopami antropogenicznymi (^{238}Pu , $^{249+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs), kosmogenicznymi (^7Be , ^{22}Na) i ziemskimi (^{40}K , ^{210}Pb) w przygruntowej warstwie powietrza i w całkowitym opadzie atmosferycznym
- zbadanie zależności stężenia aktywności rozważanych izotopów w przygruntowej warstwie powietrza od stężenia pyłu zawieszonego w powietrzu
- zbadanie zależności stężenia i depozycji aktywności rozważanych izotopów w badanych próbkach od wybranych wskaźników meteorologicznych
- zbadanie zależności między stężeniem aktywności rozważanych izotopów w przygruntowej warstwie powietrza, a stężeniem i depozycją aktywności tych izotopów w całkowitym opadzie atmosferycznym
- identyfikacja źródeł plutonu w badanych próbkach na podstawie znajomości stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ oraz $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$
- oszacowanie dawek pochodzących od narażenia zewnętrznego i wewnętrznego na promieniowanie jonizujące emitowane przez rozważane izotopy zawarte w przygruntowej warstwie powietrza
- zbadanie sezonowości oraz trendów długookresowych w szeregach czasowych stężenia i depozycji aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych w badanych próbkach

Przedstawione powyżej cele eksploracji wybrano na podstawie wstępnej analizy danych pomiarowych oraz w wyniku identyfikacji ograniczeń, jakimi były:

- pochodzenie danych tylko z jednego punktu pomiarowego
- mała rozdzielczość danych
- różny okres próbkowania dla próbek aerozoli atmosferycznych (tygodnie) i próbek całkowitego opadu atmosferycznego (miesiące)

FAZA 2: zrozumienie danych

Pierwszym etapem zrozumienia danych było zebranie wszystkich istotnych danych dotyczących pomiarów spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych oraz próbek całkowitego opadu atmosferycznego zebranych w latach 2005-2016. Celem tego etapu było skompletowanie informacji o każdej próbce oraz odnalezienie wszystkich istniejących próbek zebranych w okresie 2010-2016 (próbki z lat 2005-2009 zostały zniszczone podczas poprzednich analiz alfa spektrometrycznych). Wśród zebranych danych pomiarowych najważniejsze informacje stanowiły:

- dane charakteryzujące próbki (objętość, masa, czas poboru, powierzchnia zbierania)
- dane charakteryzujące pomiary próbek (data pomiaru, czas pomiaru, detektor, geometria pomiaru)
- dane charakteryzujące pomiary tła promieniotwórczego
- dane charakteryzujące pomiary wydajności detektorów
- surowe widma zmierzonych próbek
- surowe widma pomiarów tła promieniotwórczego
- surowe widma pomiarów wydajności detektorów
- wyniki analizy widm

W przypadku spektrometrii promieniowania alfa dodatkowo zebrano dane o użytych znacznikach promieniotwórczych, ślepych próbach i próbkach materiału referencyjnego.

Następnie zgromadzone dane wykorzystano do wyznaczenia aktywności wybranych izotopów alfa i gamma promieniotwórczych w badanych próbkach. W tej fazie zidentyfikowano następujące ograniczenia:

- braki wśród danych identyfikujących próbki (np. brak informacji o przepływie powietrza, masie pyłu zgromadzonego na filtrze)
- braki wśród fizycznie istniejących próbek (próbki nie zostały odnalezione)
- braki wśród danych pomiarowych (np. brak daty pomiaru)
- braki w zbiorze zgromadzonych widm emisyjnych (widma nie zostały odnalezione)
- brak próbek związany z przerwami technicznymi w pracy stacji pomiarowych
- mała częstotliwość wykonywania pomiarów wydajności detektorów
- błędne dane (najczęściej niewiarygodny czas pomiaru, niewiarygodna wartość objętości)
- brak spójności danych (różne źródła danych, różna postać danych)

Wstępna analiza otrzymanych wyników pomiarowych stężenia i depozycji aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych w badanych próbkach pozwoliła zaobserwować:

- okresy o różnej średniej wartości mierzonych wielkości
- występowanie obserwacji odległych

Po sprawdzeniu danych pomiarowych i danych charakteryzujących próbki część obserwacji odległych zidentyfikowano w tej fazie jako błędy pomiarowe wynikające przede wszystkim z niewiarygodnych wartości objętości próbek oraz nieprawidłowego czasu pomiaru zapisanego automatycznie w plikach widm emisyjnych i usunięto je ze zbioru.

FAZA 3: przygotowanie danych

W ramach przygotowania danych pomiarowych stężenia i depozycji aktywności wybranych izotopów do dalszych analiz wykonane zostały następujące procedury:

- sporządzenie histogramów częstości występowania poszczególnych wyników pomiarowych (z pominięciem wyników poniżej limitu detekcji)
- zastąpienie wyników pomiarowych będących poniżej limitu detekcji wartościami wyznaczonymi przez algorytm opisany poniżej

Wartości stężenia oraz depozycji aktywności dla wyników będących poniżej limitu detekcji oszacowano na podstawie oceny struktury histogramów częstości występowania poszczególnych wyników. Do stworzenia histogramów użyto tylko wyników pomiarowych będących powyżej limitu detekcji. Liczbę przedziałów k wybrano korzystając ze wzoru 102 [70]:

$$k = \sqrt{n} \quad (102)$$

Gdzie:

n – liczba pomiarów powyżej limitu detekcji

Dla pomiarów, dla których liczba wyników w pierwszym lub drugim przedziale histogramu była niższa niż w kolejnych przedziałach, jako wartość stężenia lub depozycji aktywności wyników poniżej limitu detekcji przyjęto limit detekcji podzielony przez $\sqrt{2}$. Dla pomiarów, dla których liczba wyników stale malała w kolejnych przedziałach, jako wartość stężenia lub depozycji aktywności wyników poniżej limitu detekcji przyjęto limit detekcji podzielony przez 2 [69].

- wyznaczenie podstawowych parametrów statystyki opisowej takich jak średnia, wartość maksymalna, wartość minimalna, błąd standardowy, mediana, średnia odcięta (wyznaczona w kolejnej fazie po usunięciu obserwacji odległych)
- sporządzenie wykresów zmienności wyników pomiarowych w czasie. W przypadku wyników poniżej limitu detekcji (W) założono, że rzeczywista wartość znajduje się pomiędzy 0, a wartością limitu detekcji MDC/MDD , w związku z tym dolną i górną granicę niepewności pomiarowej wartości W przyjęto odpowiednio jako $[0, W]$ i $[W, MDC/MDD]$, gdzie W oznacza wartość nadaną przez algorytm wynikom pomiarowym będącym poniżej limu detekcji
- przeprowadzenie analizy zmienności wyników pomiarowych w zależności od wykorzystywanego detektora i geometrii pomiarowej przy użyciu nieparametrycznego testu Kruskala-Wallisa [80] oraz testu post-hoc Dunna [81]
- przeprowadzenie analizy obserwacji odległych w oparciu o algorytm rozstępu międzykwartylowego Tukey'a ze współczynnikiem proporcjonalności $k=3$ [82] oraz analizę wizualną wykresów przedstawiających zmienność wyników w czasie
- wyczyszczenie danych z obserwacji odległych uznanych w wyniku analizy punktów odstających za błędy pomiarowe
- zastąpienie brakujących danych w zbiorze przez wartości wyznaczone przy pomocy interpolacji liniowej
- zmiana rozdzielczości wybranych danych w celu dostosowania ich do wykorzystania w poszczególnych analizach (zagregowanie tygodniowych wyników pomiarowych do miesięcznych, zagregowanie dziennych danych pogodowych do tygodni i miesięcy)

Po przygotowaniu danych do eksploracji, przy pomocy wybranych technik podjęto próbę osiągnięcia celów badawczych określonych w fazie 1. W ramach tego etapu wykonano:

- ✓ analizę korelacji rang Spearmana oraz wykresy rozrzutu danych w celu zbadania wzajemnych zależności między danymi
- ✓ analizę korelacji krzyżowych w celu zbadania zależności między wynikami pomiarowymi zarejestrowanymi w powietrzu i w opadach atmosferycznych
- ✓ model regresji wielokrotnej [83] w celu zbadania zależności wyników pomiarowych od wybranych danych meteorologicznych
- ✓ oszacowanie dawki równoważnej od narażenia zewnętrznego i dawki obciążającej wynikającej z narażenia wewnętrznego na promieniowanie jonizujące emitowane przez rozważane izotopy zawarte w powietrzu

W celu wyznaczenia dawki równoważnej od narażenia zewnętrznego wykorzystano algorytm, w którym założono, że człowiek znajduje się w nieskończonym obłoku radioaktywnym o stałym stężeniu aktywności danego izotopu w jednostce objętości powietrza. W takim przypadku moc dawki w powietrzu wynosi (wzór 103) [65]:

$$\dot{D} = 4,47 \cdot 10^{-7} \cdot C \cdot \overline{E}_{\gamma} \left[\frac{Gy}{h} \right] \quad (103)$$

Gdzie:

C – stężenie aktywności danego izotopu w powietrzu $\left[\frac{kBq}{m^3} \right]$

\overline{E}_{γ} – średnia wartość energii promieniowania izotopu na jeden rozpad [MeV]

Stąd całkowita dawka pochłonięta w powietrzu w ciągu roku wynosi (wzór 104):

$$D_{roczna} = \dot{D} \cdot 24 \cdot 365 [Gy] \quad (104)$$

Znając dawkę pochłoniętą w powietrzu można wyznaczyć dawkę równoważną korzystając ze wzoru 105 [71]:

$$H_{roczna} = \frac{D_{roczna}}{0,87} [Sv] \quad (105)$$

Następnie roczne dawki równoważne pochodzące od rozważanych izotopów zsumowano uzyskując całkowitą roczną dawkę równoważną.

W celu wyznaczenia rocznej efektywnej dawki obciążającej pochodzącej od inhalacji wybranych izotopów zawartych w powietrzu skorzystano ze wzoru 49 (punkt 7, rozdział I) (wzór 106).

$$E_{j,o} = e(g)_{j,o} \cdot J_{j,o} [Sv] \quad (106)$$

Gdzie:

$E_{j,o}$ – efektywna dawka obciążająca pochodząca od inhalacji radionuklidu j [Sv]

$e(g)_{j,o}$ – jednostkowa dawka obciążająca dla osoby z grupy wiekowej g , w wyniku wniknięcia drogą oddechową (o) radionuklidu j o aktywności 1 Bq $[\frac{Sv}{Bq}]$

$J_{j,o}$ – aktywność wchłoniętego radioizotopu j drogą oddechową (o) [Bq]

Zgodnie z zasadą ochrony radiologicznej mówiącą o zachowaniu konserwatywności przy obliczaniu dawek promieniowania jonizującego (założenie najgorszego możliwego scenariusza), jako jednostkowe dawki obciążające wybrano wartości odpowiadające szybkiej absorpcji płucnej (F).

Następnie dla każdego izotopu policzono miesięczne dawki obciążające, a wyniki przedstawiono na wykresie prezentującym zmienność miesięcznej dawki obciążającej w czasie. Dla zachowania spójności danych obliczenia wykonano dla okresu 2010-2016 (okres dla którego uzyskano wyniki pomiarowe stężenia aktywności izotopów plutonu).

Aby uzyskać miesięczną dawkę obciążającą od aktywności wchłoniętego drogą oddechową radioizotopu j skorzystano ze wzoru 107 [75]:

$$J_{j,o} = C \cdot V \cdot t \text{ [Bq]} \quad (107)$$

Gdzie:

C – stężenie aktywności radioizotopu j $[\frac{Bq}{m^3}]$

V – objętość powietrza wdychana w ciągu doby $[m^3]$

t – miesięczny czas ekspozycji, przyjęty jako 30 dni

Następnie dla każdego izotopu wyznaczono średnią dawkę miesięczną i po pomnożeniu przez 12 otrzymano dawkę roczną. Otrzymane dawki roczne zsumowano uzyskując całkowitą roczną efektywną dawkę obciążającą pochodzącą od inhalacji rozważanych izotopów promieniotwórczych.

- ✓ analizę struktury szeregów czasowych w dziedzinie czasu oraz w dziedzinie częstotliwości w celu zbadania sezonowości oraz trendów długookresowych [84]
 - przygotowanie szeregu czasowego
Z szeregu czasowego $\{x_n\}, n \in \{0, 1, \dots, N - 1\}$ o długości N usunięto trend liniowy $y = ax + b$ uzyskując szereg $\{x'_n\}$. Następnie znalezione współczynniki a i b zamieszczono w tabelach wynikowych, a sam trend zaznaczono na wykresach obrazujących składowe szeregi w dziedzinie czasu. W kolejnym kroku, w celu eliminacji zjawiska przecieku, zastosowano okno czasowe Hanninga $\{w_n\}$ [117] uzyskując szereg $x''_n = x'_n w_n$ o wytłumionych końcach. W ostatnim etapie

przygotowań szereg $\{x''_n\}$ uzupełniono zerami zwiększając jego długość o rząd wielkości, w celu uzyskania lepszej rozdzielczości częstotliwościowej.

- dyskretna transformacja Fouriera
Tak przygotowany szereg $\{x''_n\}, n \in \{0, 1, \dots, K - 1\}, K \gg N$ poddano dyskretnej transformacji Fouriera uzyskując szereg liczb zespolonych $\{Y_n\}, n \in \{0, 1, \dots, K - 1\}$. Moduł liczby $|Y_n|$ odpowiadał amplitudzie A_n składowej sygnału o częstotliwości $f_n = n f_s / K$, zaś argument $\arg(Y_n)$ był równy przesunięciu fazowemu φ_n tej składowej. Obliczono amplitudy A_n i sporządzono ich wykres $A(f), f \in (0, f_{Nyq})$ w dziedzinie częstotliwości, gdzie $f_{Nyq} = f_s / 2$ jest częstotliwością Nyquista.
- analiza widma amplitudowego w dziedzinie częstotliwości
W uzyskanym widmie sygnału poszukiwano składowych dominujących, tzn. takich których amplituda wyróżnia się z tła. Użyto w tym celu funkcji findpeaks, gdzie jako kryterium przyjęto wysokość względną (ang. peak prominence) $P > 0.6(A_{max} - A_{min})$. Dla znalezionych składowych wyznaczono A_n, f_n oraz φ_n . Wyniki przedstawiono w tabelach oraz na wykresach w dziedzinie częstotliwości i dziedzinie czasu.

FAZA 5: interpretacja znalezionych zależności

Omówienie oraz interpretacja wyników analiz przeprowadzonych w ramach fazy 3 i 4 procesu eksploracji danych przedstawiono w rozdziale III „Dyskusja wyników, wnioski i podsumowanie”.

3. Wyniki pomiarów

3.1. Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych

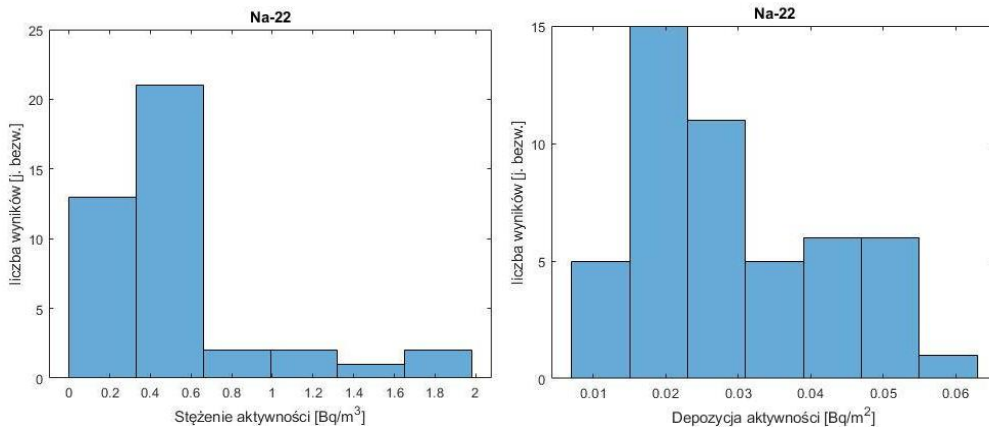
Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego

Wyniki pomiarów dla miesięcznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego przedstawione zostały w postaci depozycji oraz stężenia aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych. Spośród 134 próbek, 130 próbek było zbieranych przez okres 1 miesiąca, 2 próbki przez okres dłuższy od jednego miesiąca (próbka dwumiesięczna styczeń+luty 2008 i trzymiesięczna listopad+grudzień 2010 + styczeń 2011), natomiast dla kwietnia 2011 zebrano 2 kolejne próbki zamiast jednej. Z uwagi na niewiarygodne dane dotyczące pomiarów objętości próbek pobranych przed sierpniem 2008 roku, zdecydowano o wykorzystaniu wyników stężenia aktywności rozważanych radionuklidów dla próbek zebranych w okresie od 2009 do 2016 roku (w przypadku depozycji brany jest pod uwagę cały okres pomiarowy, tj. 08.2005-12.2016). Dla próbek z okresu od 08.2005 do 07.2015 część wyników została już opublikowana [39]. Tabela 18 przedstawia liczbę wszystkich wyników z wyszczególnieniem liczby wyników, których wartości znalazły się poniżej limitu detekcji.

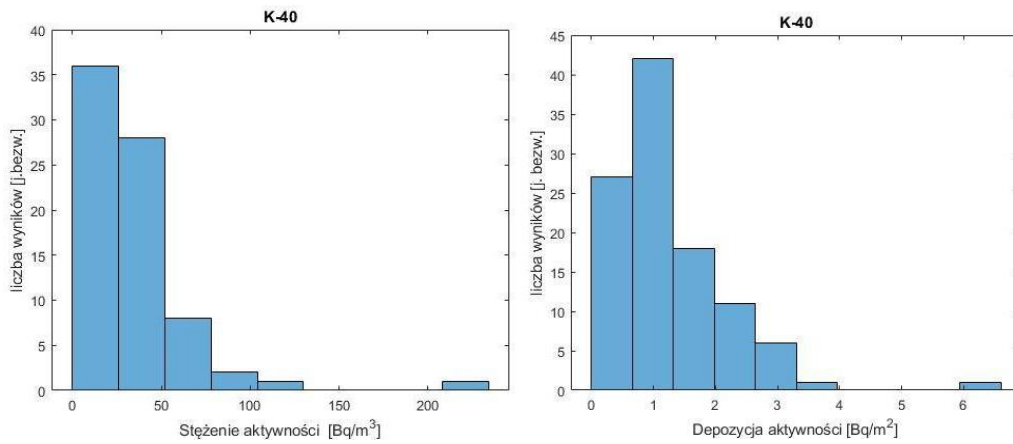
Tabela 18. Liczba uzyskanych wyników pomiarowych dla próbek całkowitego opadu atmosferycznego.

		Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Depozycja aktywności [Bq/m²]	Liczba wszystkich wyników	134	133	134	134	134
	Liczba wyników poniżej limitu detekcji	1	0	21	85	28
Stężenie aktywności [Bq/m³]	Liczba wszystkich wyników	96	95	96	96	96
	Liczba wyników poniżej limitu detekcji	1	0	19	55	19

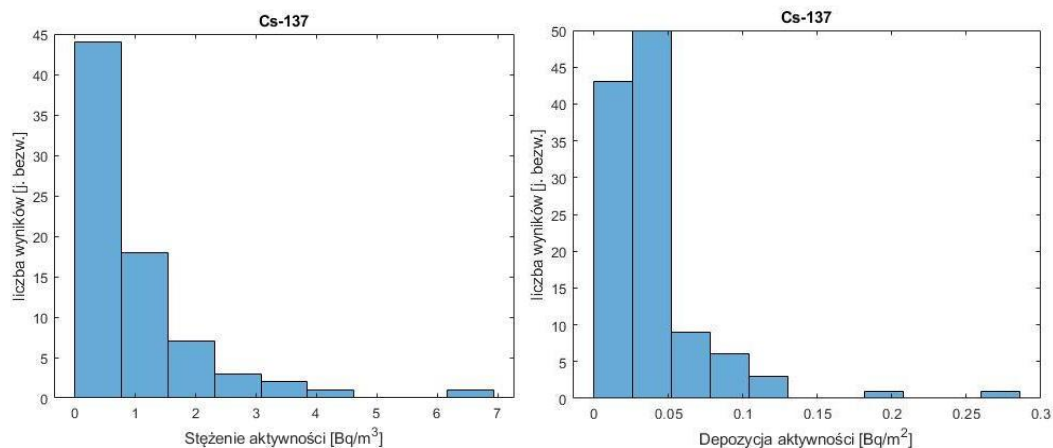
Na wykresach 5-9 przedstawiono histogramy stworzone dla wyników pomiarowych (będących powyżej limitu detekcji) stężenia i depozycji aktywności poszczególnych izotopów.



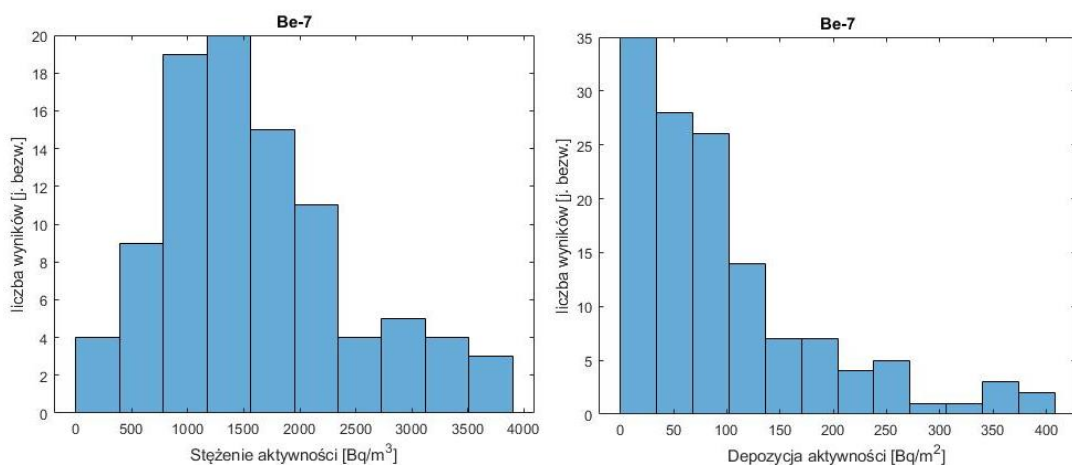
Wykres 5. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



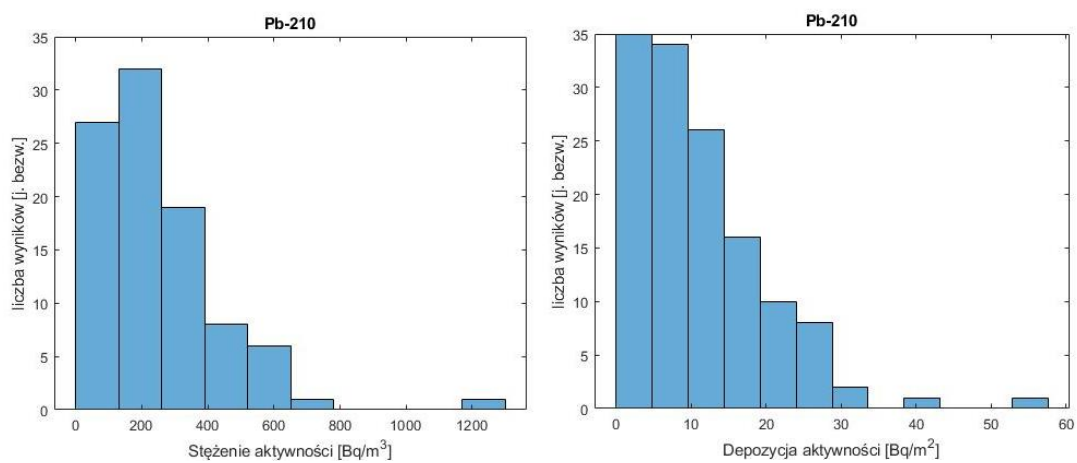
Wykres 6. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 7. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 8. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 9. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Wartości dla wyników pomiarów będących poniżej limitu detekcji, przyjęte na podstawie algorytmu opisanego w punkcie 2.5. rozdziału II przedstawia tabela 19.

Tabela 19. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów gamma spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego.

Izotop	Stężenie	Depozycja
Na-22	$MDC/\sqrt{2}$	$MDD/\sqrt{2}$
K-40	$MDC/2$	$MDD/\sqrt{2}$
Cs-137	$MDC/2$	$MDD/\sqrt{2}$
Be-7	-	-
Pb-210	$MDC/\sqrt{2}$	$MDD/2$

Następnie dla tak przygotowanych danych (tj. po modyfikacji wartości dla wyników będących poniżej limitu detekcji) wyznaczono wybrane elementy statystyki opisowej, której wyniki zestawiono w tabelach 20 i 21.

Tabela 20. Wyniki statystyki opisowej pomiarów depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Depozycja aktywności [Bq/m ²]	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Średnia	11	96	0,037	0,016	1,1
Błąd standardowy	0,75	7,5	0,0029	0,0012	0,1
Mediana	8,90	70	0,027	0,013	0,9
Minimum	0,53	2,6	0,0054	0,00023	0,2
Maksimum	57	406	0,28	0,061	6,5
Średnia odcięta	11	94	0,034	0,017	1,0

Tabela 21. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Stężenie aktywności [Bq/m ³]	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Średnia	242	1605	0,83	0,45	28
Błąd standardowy	19	88	0,09	0,04	3,1
Mediana	173	1353	0,56	0,37	22
Minimum	54	273	0,07	0,07	2,0
Maksimum	1290	3900	6,87	1,96	227
Średnia odcięta	231	1605	0,69	0,41	26

Najwyższe wartości stężenia i depozycji aktywności zanotowano dla Be-7, natomiast najniższe dla Na-22, przy czym różnica ta sięgała 4 rzędów wielkości. Dodatkowo spośród wszystkich rozważanych izotopów dla Na-22 zarejestrowano najwięcej wyników poniżej limitu detekcji (63%). W celu uzyskania wstępnej informacji o sezonowej zmienności stężenia i depozycji rozważanych izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego wyznaczono średnie miesięczne wartości w każdym sezonie. Wyniki przedstawiono w tabelach 22 i 23.

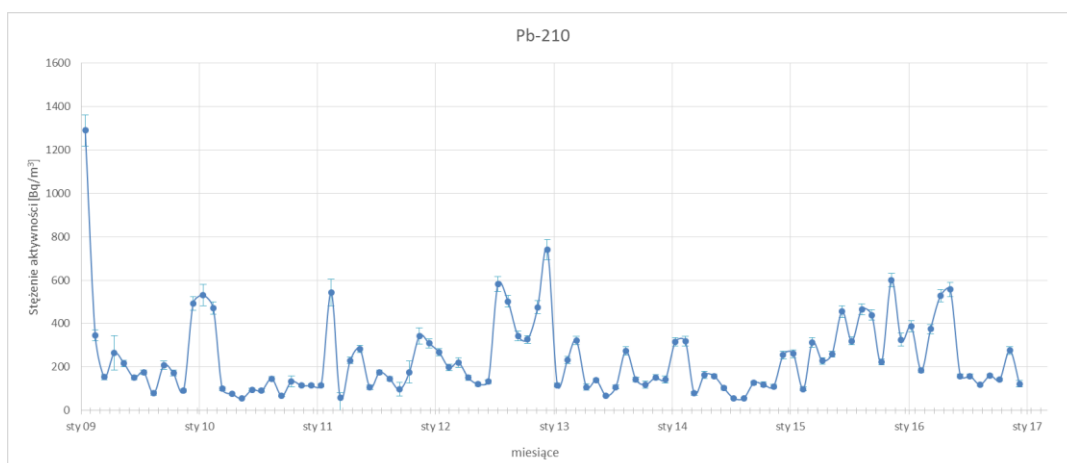
Tabela 22. Średnie miesięczne sezonowe deponycje aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Izotop	Średnia miesięczna deponycja aktywności w sezonie							
	Zima		Wiosna		Lato		Jesień	
	$\bar{D} \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$u(\bar{D}) \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$\bar{D} \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$u(\bar{D}) \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$\bar{D} \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$u(\bar{D}) \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$\bar{D} \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$u(\bar{D}) \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
Be-7	4,70E+01	5,56E+00	1,35E+02	1,81E+01	1,54E+02	2,29E+01	3,50E+01	5,94E+00
Cs-137	3,19E-02	4,34E-03	4,50E-02	5,98E-03	4,12E-02	6,63E-03	2,32E-02	3,22E-03
K-40	5,75E-01	6,76E-02	1,20E+00	1,49E-01	1,08E+00	1,14E-01	1,21E+00	1,64E-01
Na-22	1,52E-02	1,58E-03	2,67E-02	3,29E-03	2,27E-02	3,02E-03	1,36E-02	1,92E-03
Pb-210	9,36E+00	1,12E+00	1,26E+01	1,55E+00	1,25E+01	1,72E+00	9,90E+00	2,19E+00

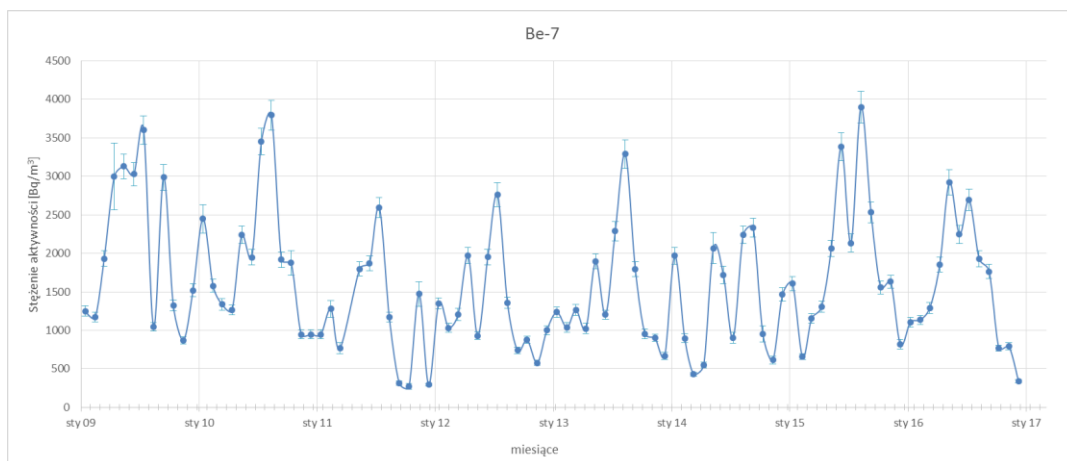
Tabela 23. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Izotop	Średnie miesięczne stężenie aktywności w sezonie							
	Zima		Wiosna		Lato		Jesień	
	$\bar{C} \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$u(\bar{C}) \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$\bar{C} \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$u(\bar{C}) \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$\bar{C} \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$u(\bar{C}) \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$\bar{C} \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$u(\bar{C}) \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
Be-7	1,23E+03	9,52E+01	1,79E+03	1,42E+02	2,19E+03	2,11E+02	9,41E+02	9,64E+01
Cs-137	9,50E-01	1,62E-01	8,34E-01	1,54E-01	7,83E-01	1,85E-01	6,63E-01	9,36E-02
K-40	1,67E+01	2,60E+00	2,17E+01	3,72E+00	2,09E+01	3,31E+00	5,05E+01	6,26E+00
Na-22	4,65E-01	6,23E-02	3,77E-01	2,77E-02	4,42E-01	9,68E-02	4,53E-01	7,22E-02
Pb-210	2,62E+02	3,16E+01	1,99E+02	3,19E+01	2,18E+02	3,50E+01	2,53E+02	3,78E+01

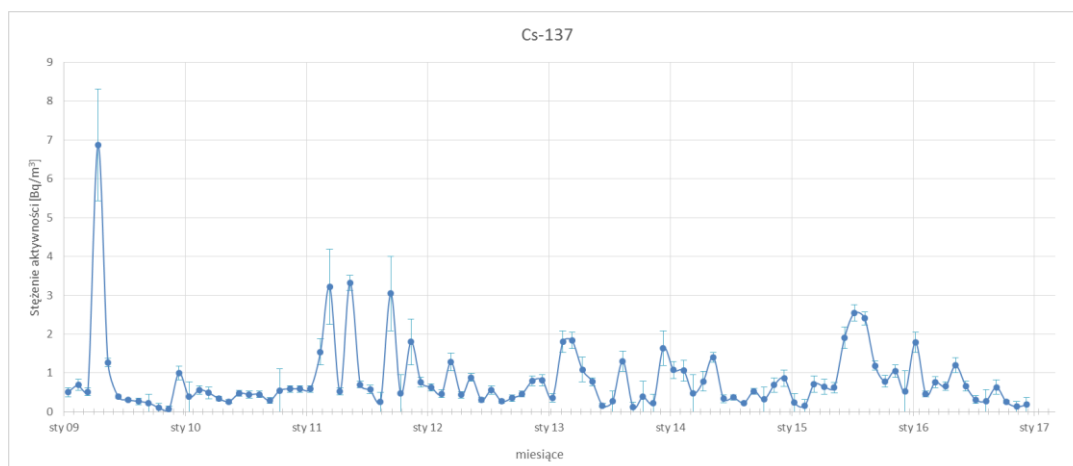
W następnym kroku sporządzono wykresy 10-19 przedstawiające zmienność stężenia i deponycji aktywności rozważanych izotopów w czasie. Dla punktów pomiarowych będących poniżej limitu detekcji górną i dolną granice niepewności pomiarowej wyznaczono na podstawie metody opisaną w punkcie 2.5 rozdziału II. Punkty te wyróżnia na wykresach sięganie odcinków graficznie przedstawiających niepewności aż do osi odciętych.



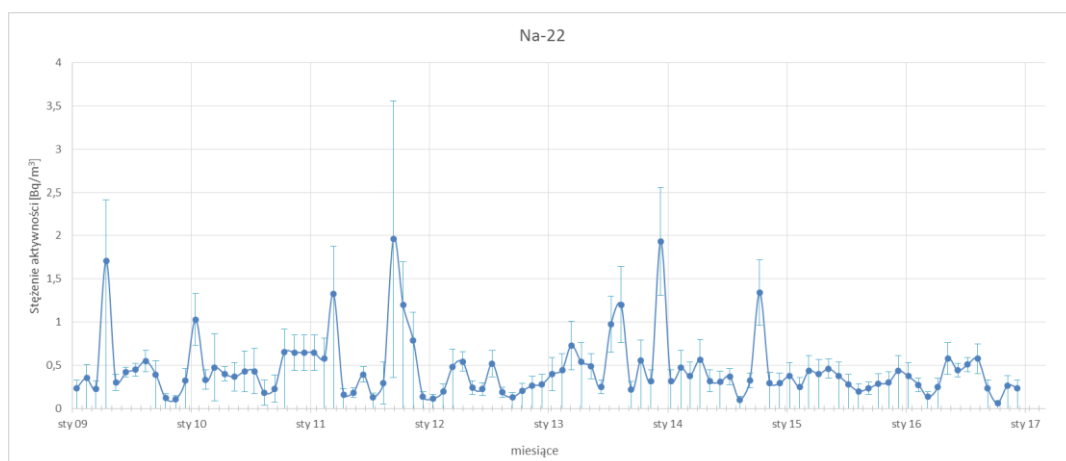
Wykres 10. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



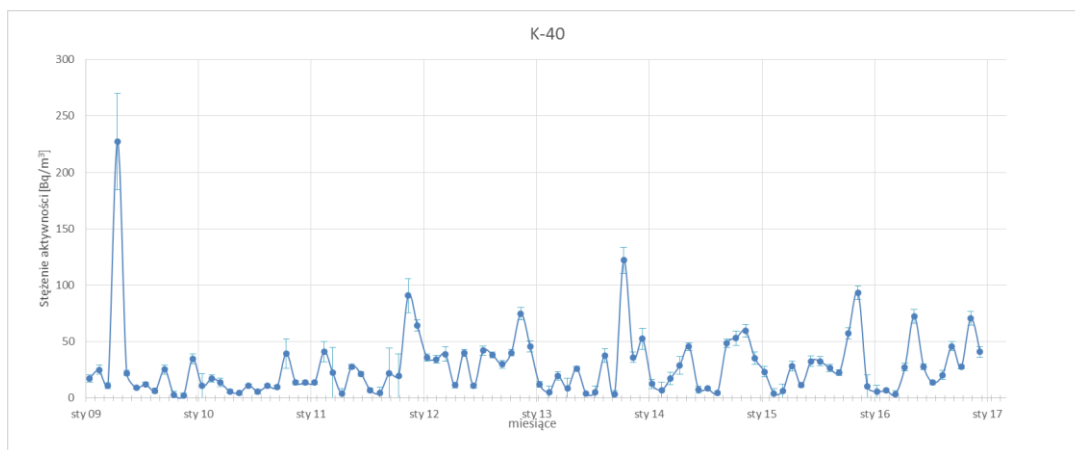
Wykres 11. Zmienność w czasie stężenia aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



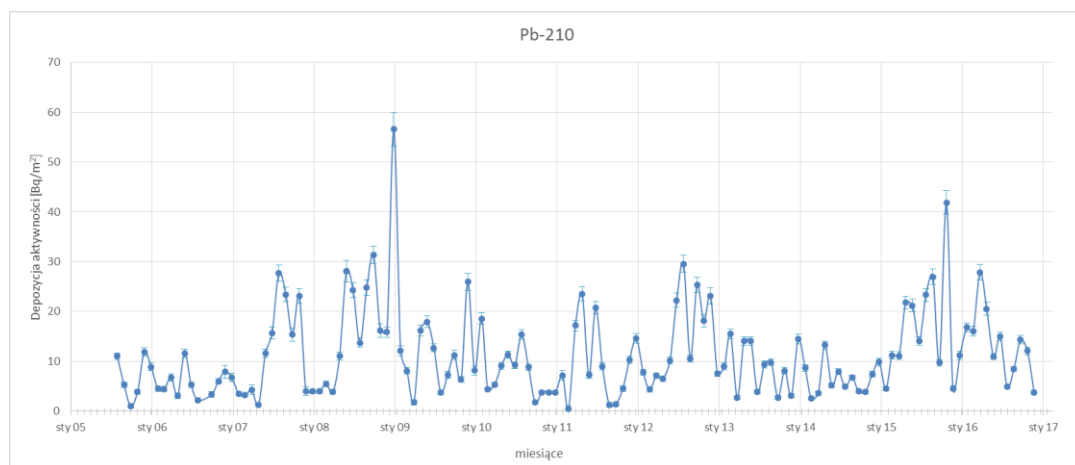
Wykres 12. Zmienność w czasie stężenia aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



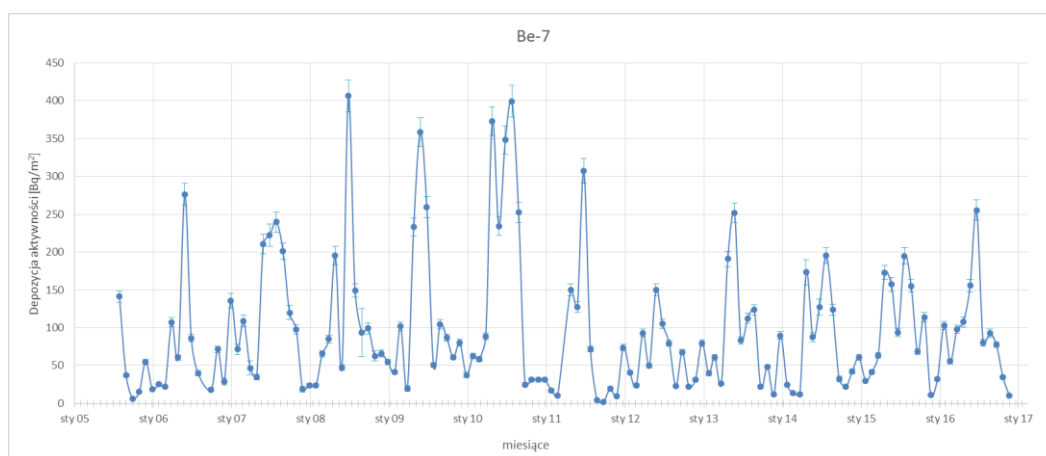
Wykres 13. Zmienność w czasie stężenia aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



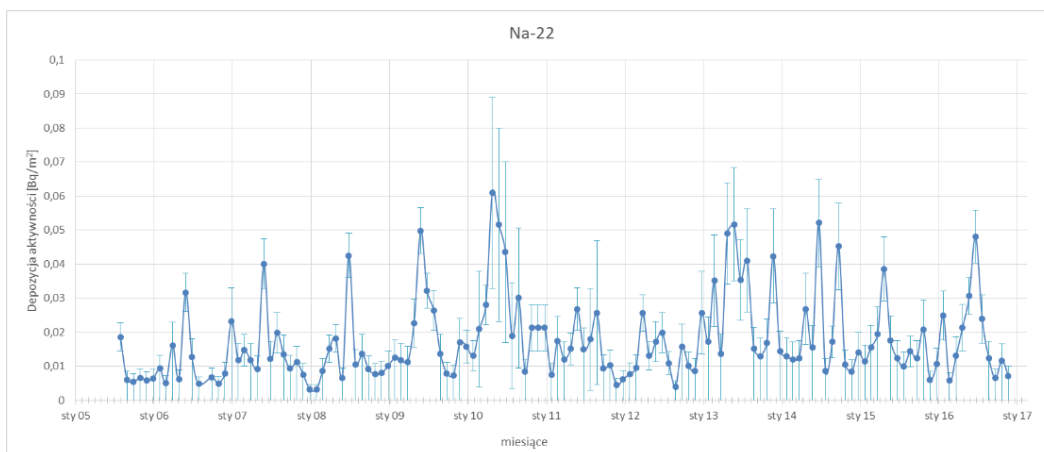
Wykres 14. Zmienność w czasie stężenia aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



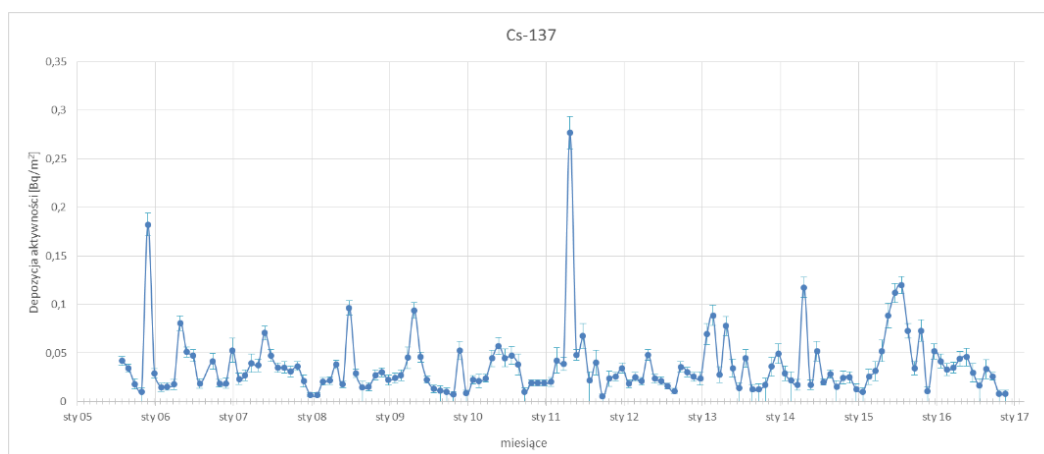
Wykres 15. Zmienność w czasie depozycji aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



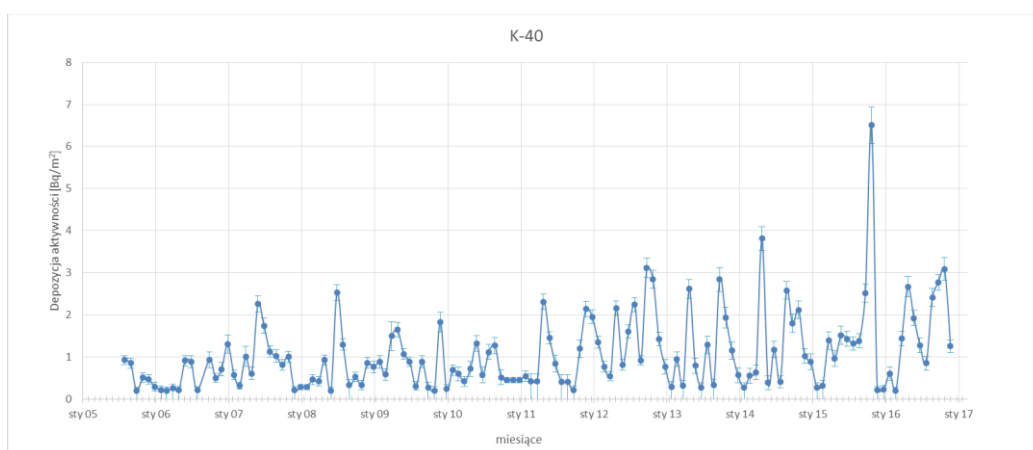
Wykres 16. Zmienność w czasie depozycji aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 17. Zmienność w czasie depozycji aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 18. Zmienność w czasie depozycji aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 19. Zmienność w czasie depozycji aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Z wykresów 10-19 wynika, że aktywność rozważanych izotopów gamma promieniotwórczych w całkowitym opadzie atmosferycznym jest zmienna w czasie oraz, że występują obserwacje nietypowe, o wyjątkowo dużej wartości. Analizę zmienności oraz obserwacji odległych przedstawiono w kolejnych częściach pracy.

Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych

Na podstawie pomiarów gamma spektrometrycznych aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych w przygruntowej warstwie powietrza łącznie uzyskano wyniki dla 601 tygodniowych próbek filtrów powietrza pochodzących ze stacji MASS-500 oraz ASS-500. Filtry ze stacji ASS-500 razem z filtrami z MASS-500 wykorzystano do pomiarów w geometrii podwójnego filtru powietrza dla wszystkich próbek z okresu od 2005 do 2006 oraz dla części próbek z okresu od 2010 do 2016 roku (łącznie 235 próbek). Część wyników pomiarowych dla lat 2005-2006 została już opublikowana [72]. Pojedyncze filtry powietrza ze stacji ASS-500 wykorzystano dla okresu od 1 do 19 tygodnia 2007 roku z uwagi na brak próbek o geometrii filtru powietrza ze stacji MASS-500 oraz dla 42 tygodni z okresu od 2010 do 2016 roku.

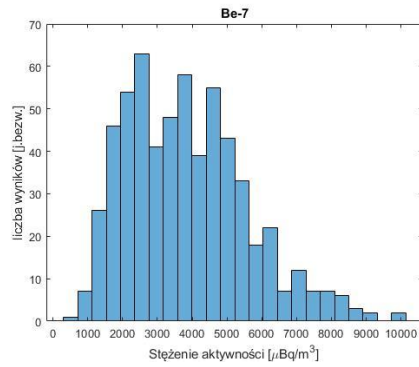
Poniższa tabela przedstawia liczbę wszystkich uzyskanych wyników pomiarowych wraz informacją o liczbie wyników będących poniżej limitu detekcji. Liczba wyników dla poszczególnych izotopów jest mniejsza niż liczba zmierzonych próbek, z uwagi na konieczność odrzucenia wyników budzących wątpliwości. Każdy wynik pomiarowy był analizowany pod kątem poprawności przebiegu pomiaru, poprawności danych pomiarowych oraz poprawności i kompletności danych charakteryzujących próbkę.

Liczba uzyskanych wyników dla poszczególnych izotopów wraz z informacją o liczbie wyników będących poniżej limitu detekcji przedstawiona jest w tabeli 24.

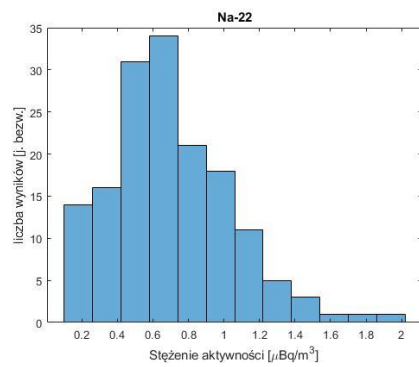
Tabela 24. Liczba uzyskanych wyników pomiarowych dla próbek aerozoli atmosferycznych.

	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Liczba wszystkich wyników	600	600	600	600	599
Liczba wyników poniżej limitu detekcji	7	0	94	444	147

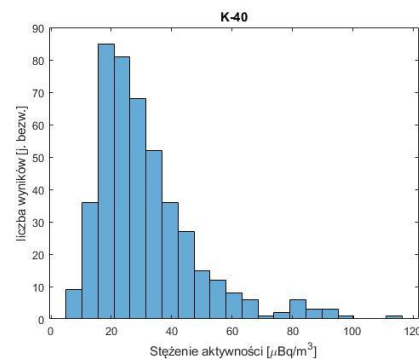
Następnie przeprowadzono procedurę oszacowania wartości będących poniżej limitu detekcji. W tym celu przygotowano histogramy dla wyników stężenia aktywności poszczególnych izotopów. Przy tworzeniu histogramu dla Cs-137 pominięto wyniki, które zostały zarejestrowane po awarii elektrowni jądrowej w Fukusimie (od 12 do 16 tygodnia 2011 roku) (wykresy 20-24).



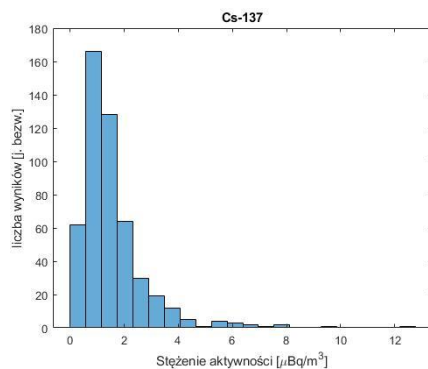
Wykres 20. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



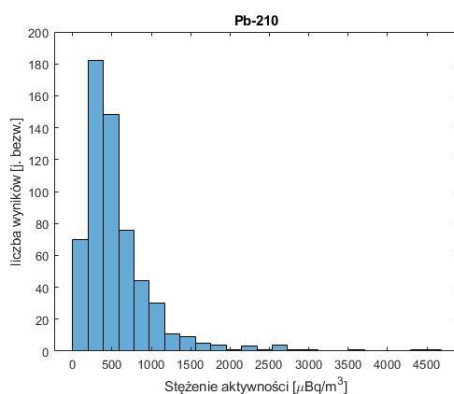
Wykres 21. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 22. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 23. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 24. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych.

Wartości dla wyników pomiarów będących poniżej limitu detekcji, przyjęte na podstawie oceny struktury histogramów przedstawia tabela 25.

Tabela 25. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów gamma spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych.

Izotop	Stężenie aktywności
Na-22	$MDC/\sqrt{2}$
K-40	$MDC/\sqrt{2}$
Cs-137	$MDC/\sqrt{2}$
Be-7	-
Pb-210	$MDC/\sqrt{2}$

Następnie dla otrzymanych danych wyznaczono wybrane elementy statystyki opisowej. Wyniki zbiorcze przedstawione zostały w tabeli 26.

Tabela 26. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych.

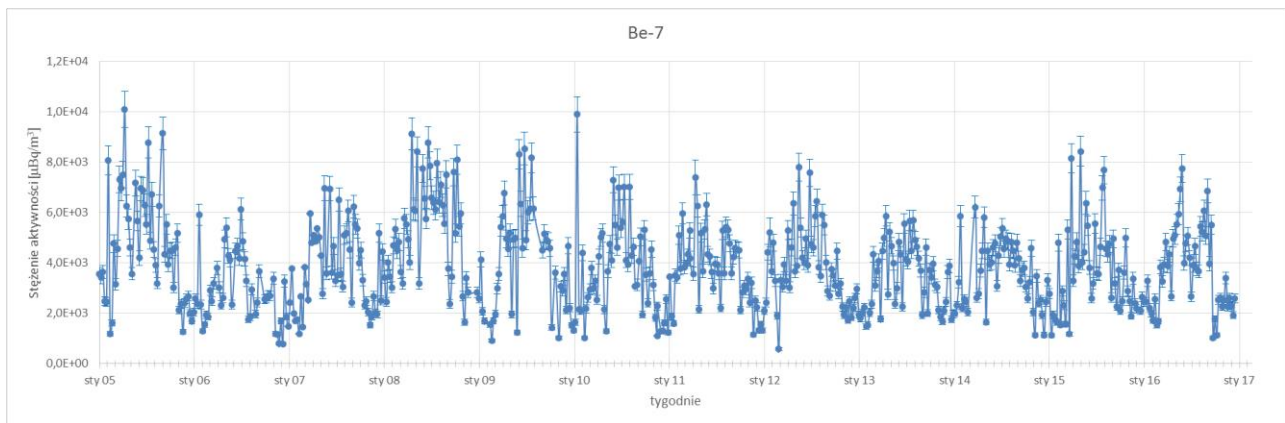
Stężenie aktywności [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Średnia	564	3831	2,01	0,70	28,00
Błąd standardowy	20	71	0,39	0,02	0,65
Mediana	437	3660	1,16	0,63	24,08
Minimum	20	574	0,14	0,04	4,12
Maksimum	4667	10100	225,21	3,98	96,50
Średnia odcięta	505	3831	1,34	0,69	27,46

Tak jak w przypadku próbek całkowitego opadu atmosferycznego najwyższe wartości stężenia aktywności zanotowano dla Be-7, natomiast najniższe dla Na-22. Również najwięcej wyników poniżej limitu detekcji zarejestrowano dla Na-22 (74%). Dodatkowo dla każdego izotopu wyznaczono średnią sezonową wartość stężenia aktywności, a wyniki zamieszczono w tabeli 27.

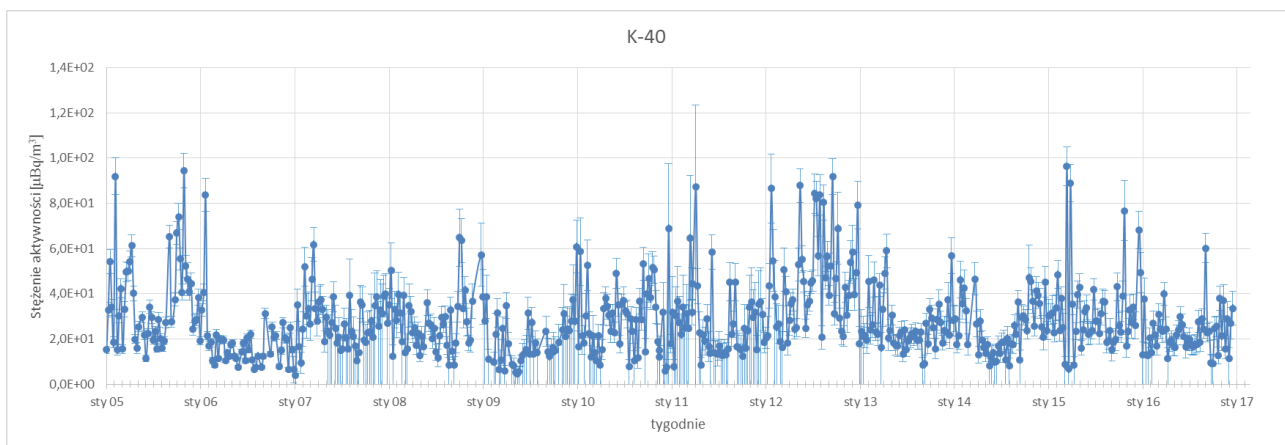
Tabela 27. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych.

Izotop	Średnie miesięczne stężenie aktywności w sezonie							
	Zima		Wiosna		Lato		Jesień	
	\bar{C} [$\frac{\mu\text{Bq}}{\text{m}^3}$]	$u(\bar{C})$ [$\frac{\text{B}\mu\text{q}}{\text{m}^3}$]	\bar{C} [$\frac{\mu\text{Bq}}{\text{m}^3}$]	$u(\bar{C})$ [$\frac{\mu\text{Bq}}{\text{m}^3}$]	\bar{C} [$\frac{\mu\text{Bq}}{\text{m}^3}$]	$u(\bar{C})$ [$\frac{\mu\text{Bq}}{\text{m}^3}$]	\bar{C} [$\frac{\mu\text{Bq}}{\text{m}^3}$]	$u(\bar{C})$ [$\frac{\mu\text{Bq}}{\text{m}^3}$]
Be-7	2,91E+03	1,53E+02	4,43E+03	1,57E+02	4,52E+03	1,75E+02	2,65E+03	1,26E+02
Cs-137	1,98E+00	2,95E-01	9,67E-01	8,16E-02	1,15E+00	2,64E-01	1,42E+00	1,14E-01
K-40	3,16E+01	1,61E+00	2,73E+01	1,93E+00	2,80E+01	3,19E+00	3,01E+01	1,98E+00
Na-22	6,77E-01	6,85E-02	7,08E-01	3,79E-02	6,13E-01	3,60E-02	7,29E-01	7,01E-02
Pb-210	6,86E+02	6,37E+01	3,93E+02	2,71E+01	5,82E+02	4,81E+01	7,57E+02	5,57E+01

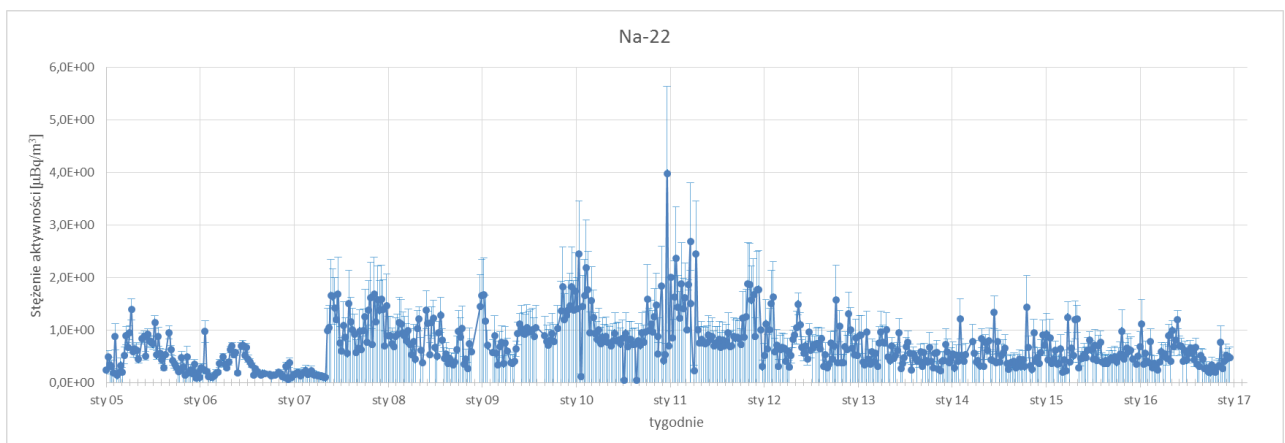
Kolejnym etapem eksploracji danych pomiarowych było przygotowanie wykresów 25-29 przedstawiających zmienność stężenia rozważanych izotopów zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych w czasie.



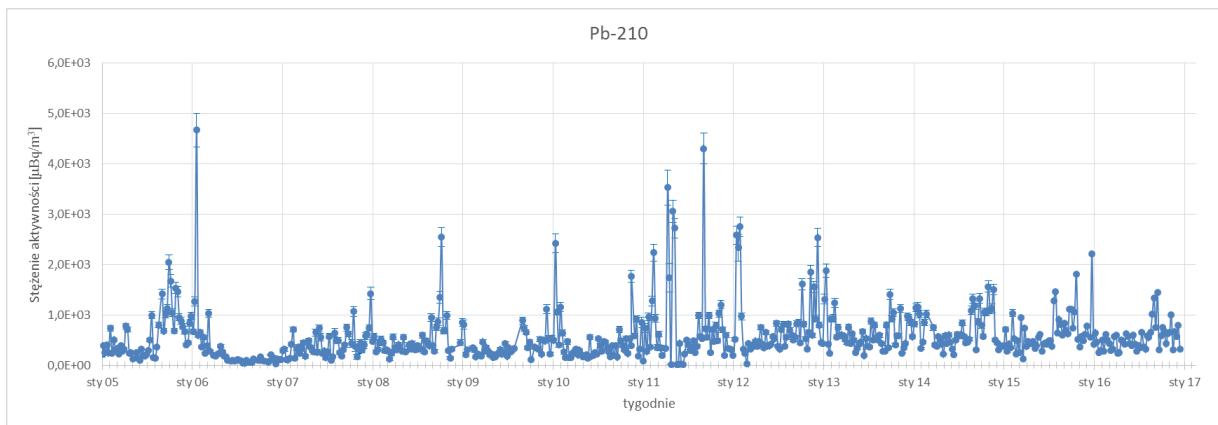
Wykres 25. Zmienność w czasie stężenia aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



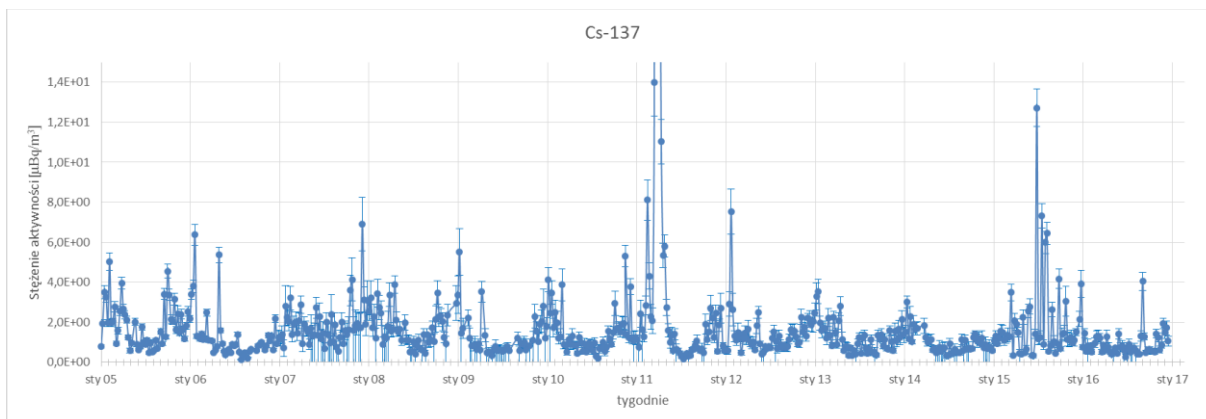
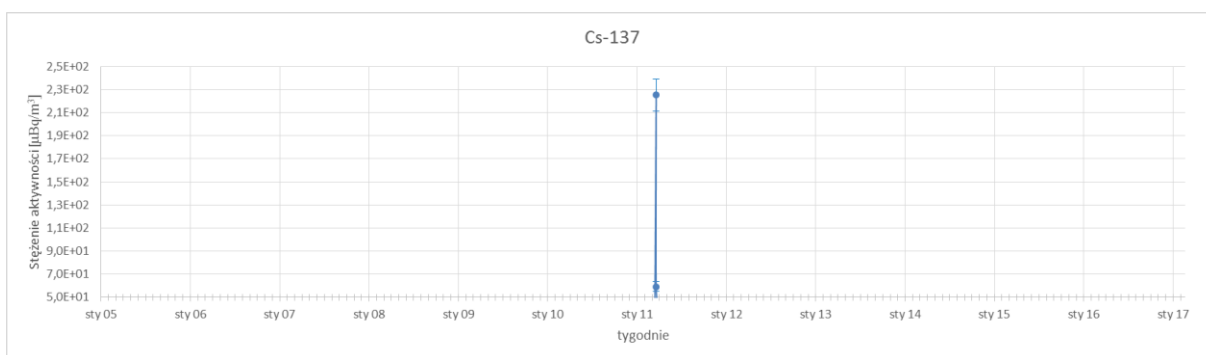
Wykres 26. Zmienność w czasie stężenia aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 27. Zmienność w czasie stężenia aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 28. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 29. Zmienność w czasie stężenia aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych. W 2011 roku widać podwyższone stężenia, w związku z awarią EJ w Fukuszymie.

W wyniku wizualnej analizy wykresów 25-29 można zauważyć następujące zjawiska: występowanie okresów o różnym poziomie badanej cechy (przykładowo wykres dla Na-22 - 2007 rok), występowanie obserwacji nietypowych (np. wykres Pb-210 - 2011 rok) oraz występowanie zmienności sezonowej (najlepiej widoczne dla Be-7). Każde z tych zjawisk zostanie omówione w kolejnych częściach pracy.

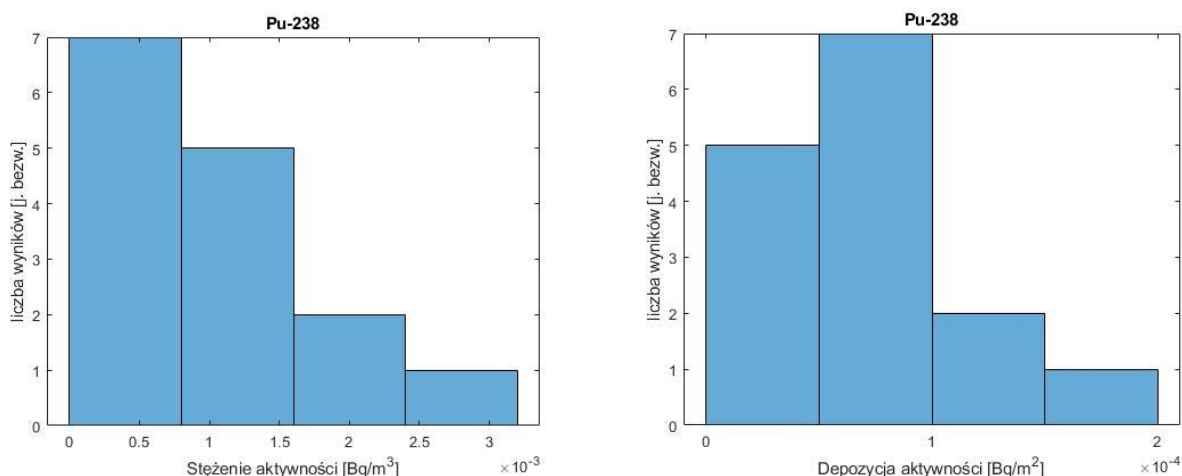
3.2. Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych

Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego

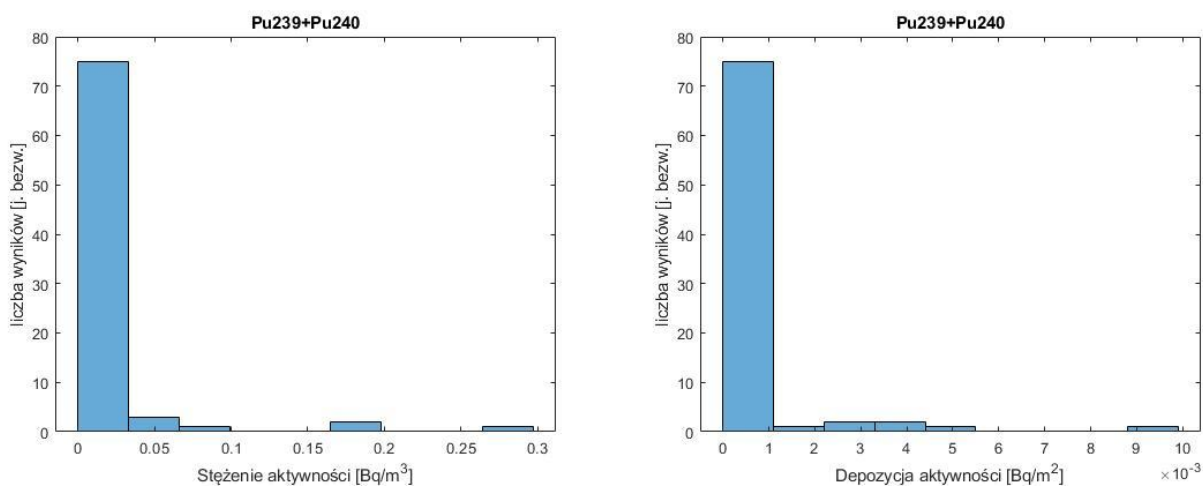
Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych uzyskano dla 81 próbek całkowitego opadu atmosferycznego pochodzących z okresu 2010-2016, w tym jednej odpowiadającej trzymiesięcznemu poborowi opadów (listopad, grudzień 2010 i styczeń 2011) oraz dwóch odpowiadających jednomiesięcznemu poborowi (kwiecień 2011). Wartości wyników będące poniżej limitu detekcji (tabela 28) wyznaczono tak jak w przypadku pozostałych pomiarów, korzystając z metody histogramów. Poniżej zamieszczono histogramy stężenia oraz depozycji aktywności dla izotopów Pu-238 oraz Pu-239+240 (wykresy 30,31).

Tabela 28. Liczba wyników pomiarowych uzyskana w pomiarach aktywności izotopów plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

	Pu-239+240	Pu-238
Liczba wszystkich wyników	81	81
Liczba wyników poniżej limitu detekcji	2	66



Wykres 30. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia i depozycji aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 31. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Wartości dla wyników pomiarów będących poniżej limitu detekcji, przyjęte na podstawie oceny struktury histogramów przedstawia tabela 29.

Tabela 29. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów alfa spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego.

Izotop	Stężenie aktywności	Depozycja aktywności
Pu-238	$MDC/2$	$MDD/\sqrt{2}$
Pu-239+Pu-240	$MDC/2$	$MDD/2$

Następnie dla tak przygotowanych danych policzono wybrane elementy statystyki opisowej. Wyniki zamieszczono w tabelach 30-33.

Tabela 30. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Stężenie aktywności [Bq/m³]	Pu-239+240	Pu-238
Średnia	0,0151	0,00056
Błąd standardowy	0,0046	0,00006
Mediana	0,0049	0,00035
Minimum	0,0005	0,00006
Maksimum	0,2889	0,00316
Średnia odcięta	0,0050	0,00049

Tabela 31. Wyniki statystyki opisowej pomiarów depozycji aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Depozycja aktywności [Bq/m ²]	Pu-239+240	Pu-238
Średnia	0,00058	0,0000296
Błąd standardowy	0,00015	0,0000030
Mediana	0,00021	0,0000195
Minimum	0,00001	0,0000055
Maksimum	0,00988	0,0001947
Średnia odcięta	0,00024	0,0000204

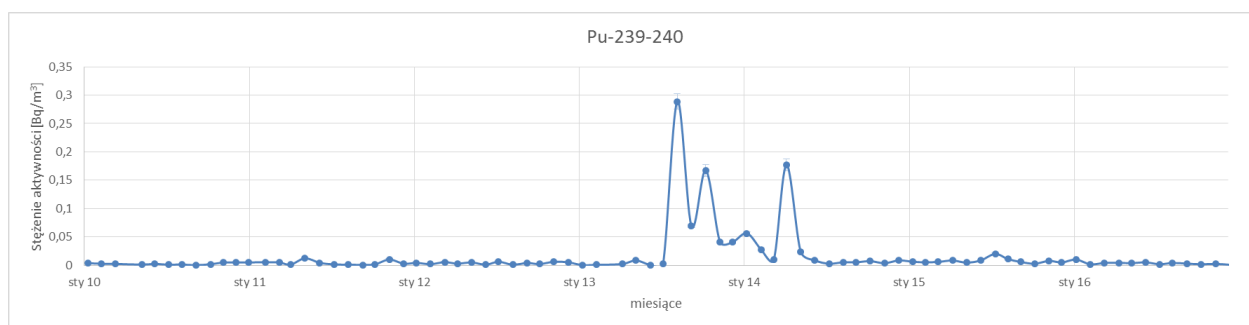
Tabela 32. Średnie miesięczne sezonowe depozycje aktywności izotopów plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Izotop	Średnia miesięczna depozycja aktywności w sezonie							
	Zima		Wiosna		Lato		Jesień	
	\bar{D} [Bq/m ²]	$u(\bar{D})$ [Bq/m ²]	\bar{D} [Bq/m ²]	$u(\bar{D})$ [Bq/m ²]	\bar{D} [Bq/m ²]	$u(\bar{D})$ [Bq/m ²]	\bar{D} [Bq/m ²]	$u(\bar{D})$ [Bq/m ²]
Pu-238	1,78E-05	8,24E-07	4,37E-05	1,01E-05	2,83E-05	4,03E-06	1,85E-05	1,27E-06
Pu-239+240	1,33E-04	1,85E-05	3,39E-04	5,85E-05	2,56E-04	4,97E-05	1,56E-04	3,03E-05

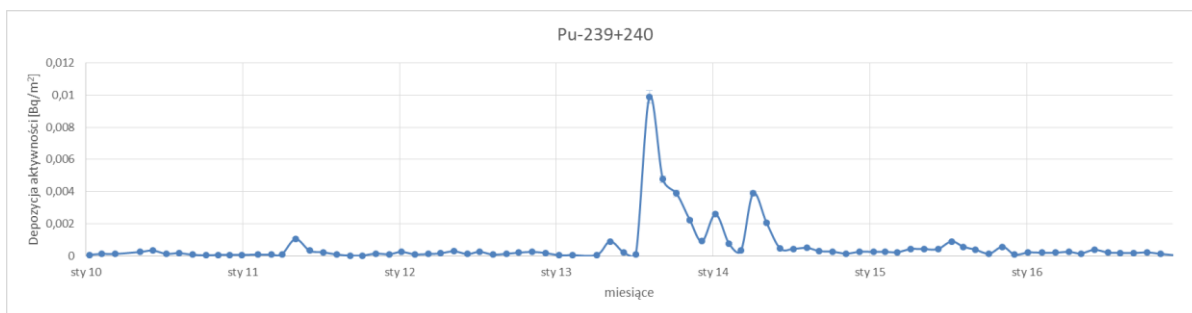
Tabela 33. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Izotop	Średnie miesięczne stężenie aktywności w sezonie							
	Zima		Wiosna		Lato		Jesień	
	\bar{C} [Bq/m ³]	$u(\bar{C})$ [Bq/m ³]	\bar{C} [Bq/m ³]	$u(\bar{C})$ [Bq/m ³]	\bar{C} [Bq/m ³]	$u(\bar{C})$ [Bq/m ³]	\bar{C} [Bq/m ³]	$u(\bar{C})$ [Bq/m ³]
Pu-238	6,40E-04	9,33E-05	6,15E-04	1,04E-04	5,27E-04	9,97E-05	7,88E-04	1,53E-04
Pu-239+240	4,29E-03	5,60E-04	4,91E-03	7,61E-04	4,45E-03	1,07E-03	4,76E-03	6,30E-04

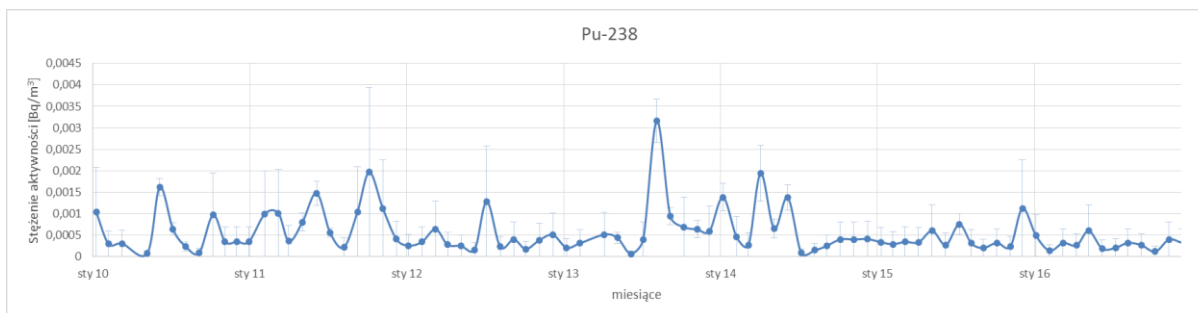
W kolejnym kroku przygotowano wykresy 32-35 zmienności stężenia i depozycji aktywności izotopów plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego w czasie.



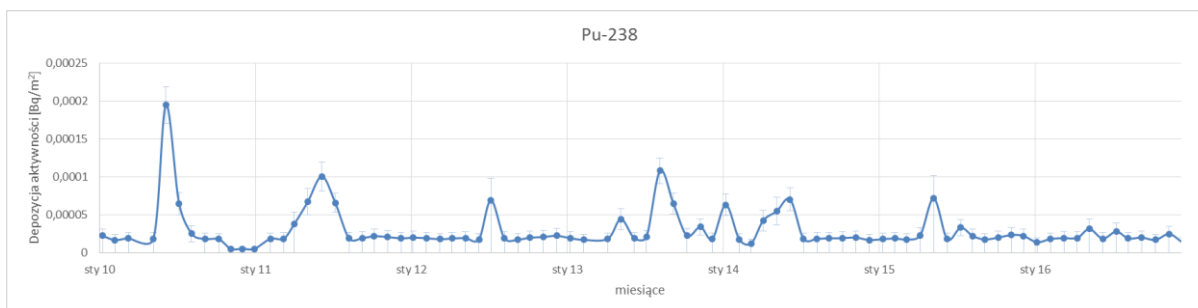
Wykres 32. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 33. Zmienność w czasie depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 34. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.



Wykres 35. Zmienność w czasie depozycji aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

Na podstawie analizy wizualnej wykresów 32-35 można zauważyć, że w przebiegu zmienności stężenia i depozycji aktywności izotopów plutonu w okresie od sierpnia 2013 do maja 2014 zanotowano znacznie podwyższone wartości w porównaniu do pozostałych okresów. Szczegółową analizę zmienności i obserwacji nietypowych przeprowadzono w kolejnych częściach pracy.

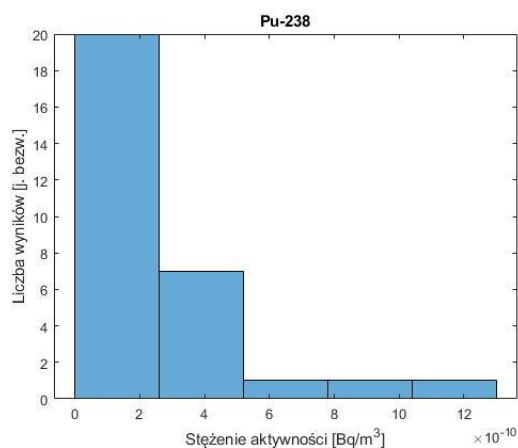
Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych

Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych uzyskano dla 89 próbek aerozoli atmosferycznych pochodzących z okresu 2010-2016, w tym dla 83 próbek czterotygodniowych, 1 dwutygodniowej, 4 trzytygodniowych oraz 1 pięcioletniowej. Wyniki będące poniżej limitu detekcji (tabela 34) wyznaczono tak jak w przypadku pozostałych pomiarów, korzystając z

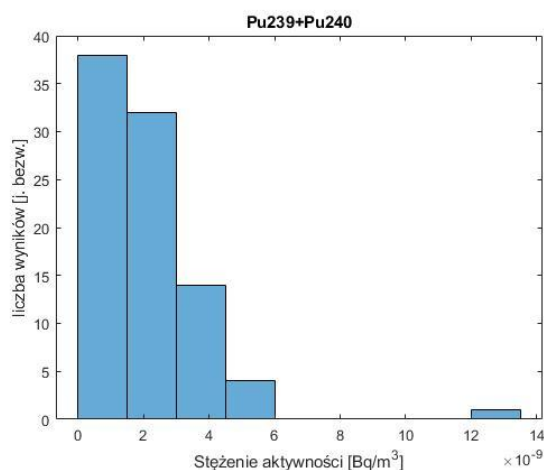
metody histogramów. Poniżej zamieszczono histogramy stężenia aktywności dla izotopów Pu-238 oraz Pu-239+240 (wykresy 36-37).

Tabela 34. Liczba wyników pomiarowych uzyskana w pomiarach stężenia aktywności izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych.

	Pu-239+240	Pu-238
Liczba wszystkich wyników	89	89
Liczba wyników poniżej limitu detekcji	3	59



Wykres 36. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 37. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych.

Wartości przyjęte dla wyników pomiarów będących poniżej limitu detekcji przedstawiono w tabeli 35.

Tabela 35. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów alfa spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych.

Izotop	Stężenie aktywności
Pu-238	MDC / 2
Pu-239+Pu-240	MDC / 2

Na podstawie tak przygotowanych danych wyznaczono wybrane parametry statystyki opisowej, której wyniki zamieszczono w tabeli 36.

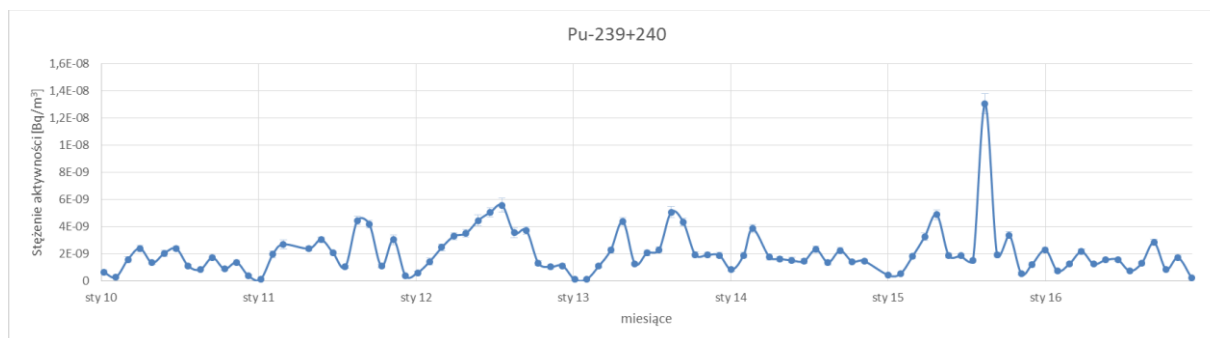
Tabela 36. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych.

Stężenie aktywności [Bq/m ³]	Pu-239+240	Pu-238
Średnia	2,07E-09	1,52E-10
Błąd standardowy	1,84E-10	1,86E-11
Mediana	1,70E-09	9,81E-11
Minimum	1,03E-10	4,41E-11
Maksimum	1,31E-08	1,27E-09
Średnia odcięta	1,95E-09	1,25E-10

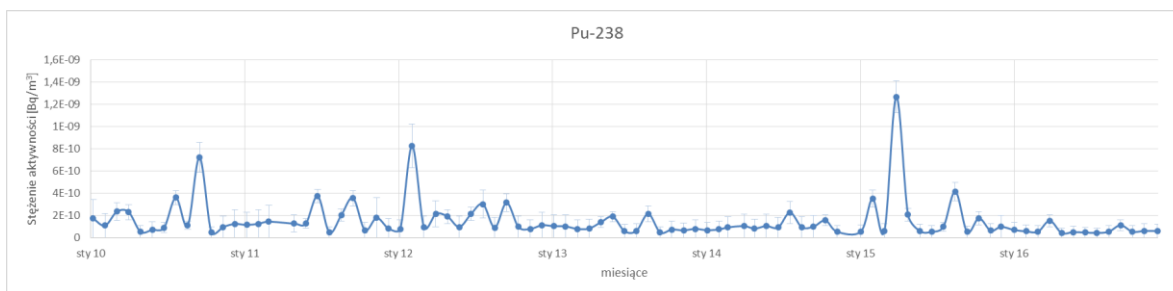
Tabela 37. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych.

Izotop	Średnie miesięczne stężenie aktywności w sezonie							
	Zima		Wiosna		Lato		Jesień	
	\bar{c} [Bq/m ³]	$u(\bar{c})$ [Bq/m ³]	\bar{c} [Bq/m ³]	$u(\bar{c})$ [Bq/m ³]	\bar{c} [Bq/m ³]	$u(\bar{c})$ [Bq/m ³]	\bar{c} [Bq/m ³]	$u(\bar{c})$ [Bq/m ³]
Pu-238	1,90E-10	2,95E-11	1,71E-10	3,50E-11	1,92E-10	2,22E-11	1,30E-10	1,00E-11
Pu-239+240	1,36E-09	1,97E-10	2,45E-09	2,10E-10	3,02E-09	4,67E-10	1,39E-09	1,63E-10

Następnie przygotowano wykresy 38-39 zmienności w czasie stężenia aktywności izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych. W przypadku wyników pomiarowych Pu-238, z których ponad 60% znalazło się poniżej limitu detekcji, punkty wyróżniające się wysoką wartością stężenia aktywności to w większości wartości powyżej limitu detekcji. W przypadku Pu-239+240 zanotowano jedną obserwację wyróżniającą się spośród innych, wysoką wartością. Dokładną analizę zmienności oraz punktów odstających przeprowadzono w dalszych etapach pracy.



Wykres 38. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych.



Wykres 39. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych

4. Wyniki analiz i modelowania

4.1. Badanie wpływu rodzaju detektora oraz geometrii pomiarowej na pomiary stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych

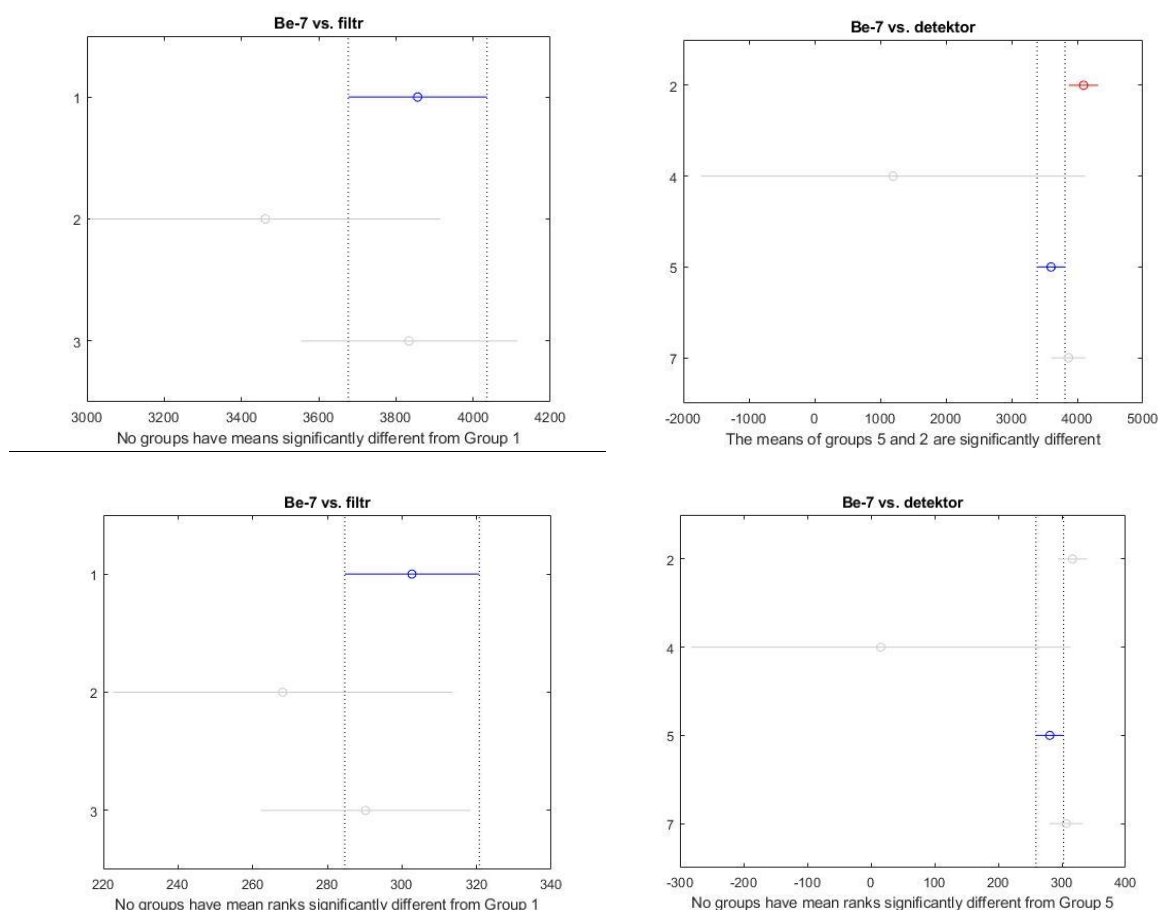
Po wstępnej analizie wizualnej wykresów przedstawiających zmiany w czasie stężenia aktywności radioizotopów w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych zauważono oprócz sezonowości i obserwacji odstających, występowanie okresów o różnej średniej wartości stężenia aktywności oraz o różnym poziomie limitu detekcji. Z uwagi na wieloletni okres pomiarowy, pomiary wykonywane były na kilku detektorach, w dwóch geometriach pomiarowych (pojedynczy i podwójny filtr powietrza) oraz dla dwóch rodzajów czerpni powietrza (filtry ze stacji MASS oraz ASS-500). Przy pomocy analizy wariancji średnich wartości stężenia aktywności C i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności MDC badanych izotopów podjęto próbę zbadania wpływu rodzaju detektora oraz rodzaju konfiguracji filtrów (składających się na mierzoną próbkę) na wyniki pomiarowe. Analizę wariancji przeprowadzono przy pomocy testu Kruskala Wallisa [80] oraz testu post hoc Dunna [81]. Do analizy wariancji zamiast jednoczynnikowej ANOVY wykorzystano testy nieparametryczne z uwagi na niespełnienie przez dane pomiarowe warunku o równoliczności grup, homogeniczności wariancji i rozkładzie normalnym. Test Kruskala Wallisa wykonano, aby wskazać czy istnieją, co najmniej dwie grupy istotnie różniące się między sobą rozkładem w zależności od używanego detektora i konfiguracji filtrów. Wyniki testu dla badanych przypadków zamieszczono w tabelach 38-43 (χ^2 , p oznaczają odpowiednio wartość i istotność statystyczną testu Chi-2). Następnie w celu analizy, które z grup istotnie różnią się między sobą wykonano test Dunna, którego wyniki pokazano na wykresach od 40 do 50. Przedstawiają one średnią wartość rangi C oraz MDC (oś X) dla poszczególnych detektorów oraz konfiguracji filtrów powietrza (oś Y). Na każdym wykresie wskazano jedną grupę (niebieski punkt), dla której pokazano które z pozostałych grup istotnie różnią się od niej rozkładem (punkty czerwone). Wykresy (oryginalnie interaktywne) wygenerowano w programie Matlab.

Detektory wykorzystywane do pomiarów oznaczono numerami od 1 do 7 (opis w dodatku 6) natomiast konfiguracje filtrów numerami od 1 do 3 (1- pojedynczy filtr MB ze stacji MASS, 2-

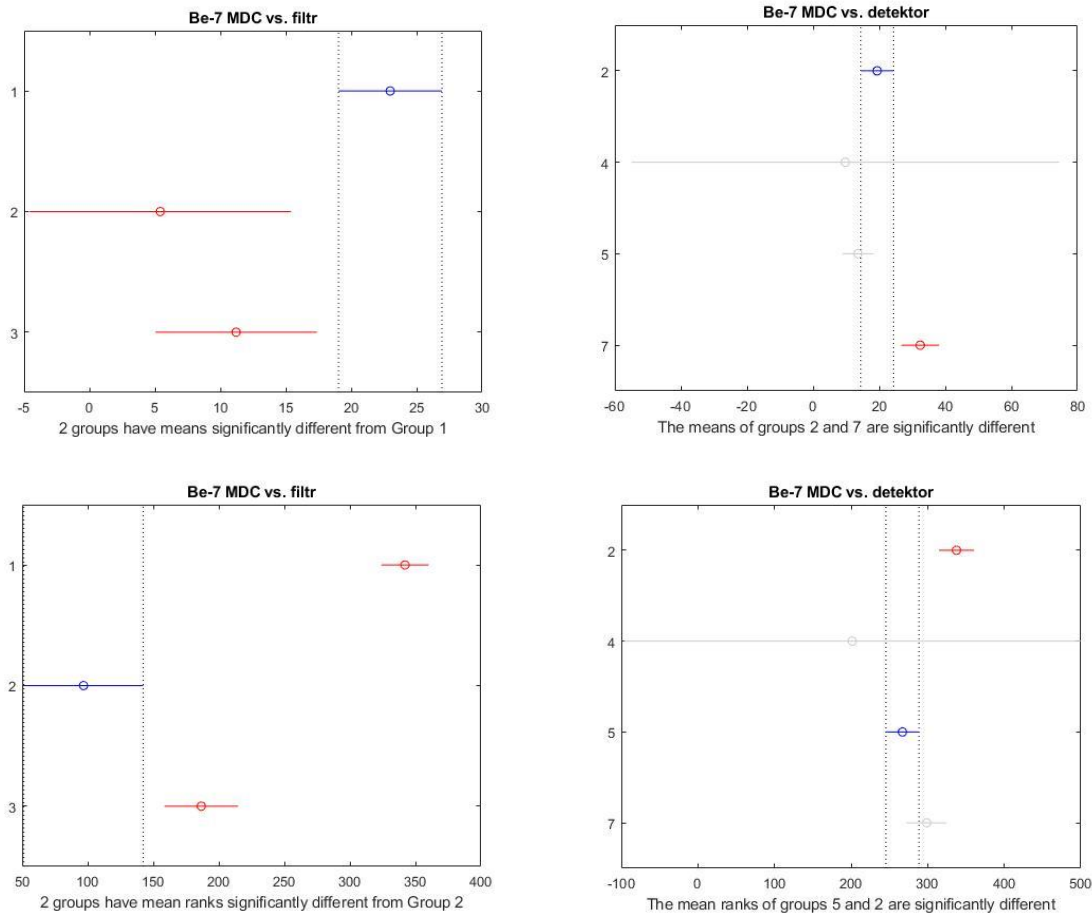
pojedynczy filtr KR ze stacji ASS, 3- podwójny filtr KRMB ze stacji MASS i ASS). Oprócz wykresów obrazujących różnice między średnimi rangami zdecydowano się dodatkowo zamieścić wykresy przedstawiające średnie wartości C oraz MDC , wykonane na postawie jednoczynnikowej ANOVY i testu Tukeya (przedstawione razem z wynikami testu Dunna na wykresach 40-50). Dane te nie zostały wykorzystane do analizy istotności różnic między średnimi (z uwagi na brak spełnienia założeń ANOVY) a jedynie do sprawdzenia, w jakich konfiguracjach średnie stężenie aktywności i średni limit detekcji osiągają wartości maksymalne i minimalne. Analizy wykonano z pominięciem okresu bezpośrednio po awarii elektrowni jądrowej w Fukuszymie, w którym zmierzono wyjątkowo wysoką aktywność Cs-137.

Tabela 38. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza.

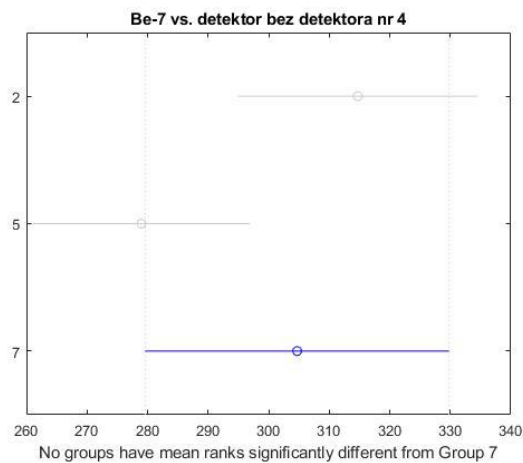
Porównanie	χ^2	p
Be-7 C vs. Filtr	1,93	0,38
Be-7 C vs. Detektor	10,67	0,01
Be-7 MDC vs. Filtr	133,00	0,00
Be-7 MDC vs. Detektor	19,75	0,00



Wykres 40. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').



Wykres 41. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').



Wykres 42. Prezentacja wyników testu Dunna zależności minimalnej mierzalnego stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora z pominięciem wyników pomiarowych uzyskanych przy pomocy detektora nr 4.

Tabela 39. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora z pominięciem wyników dla detektora nr 4.

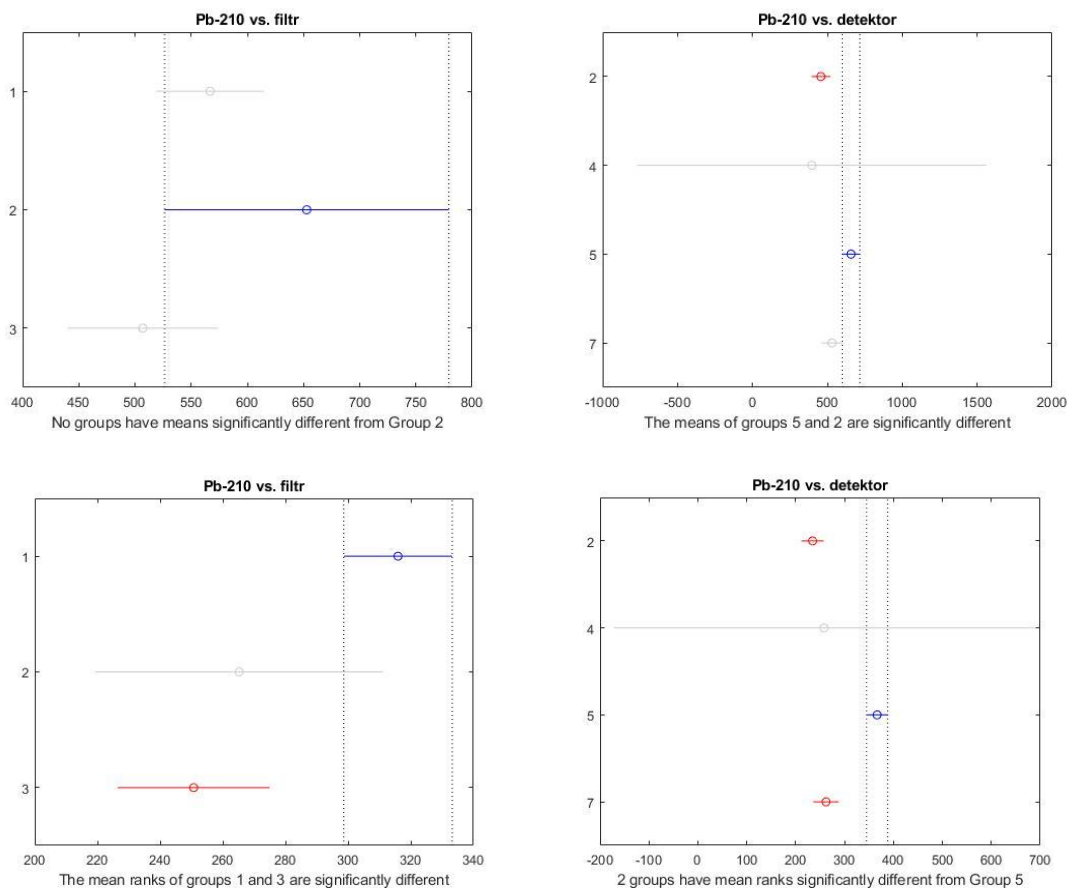
Porównanie	χ^2	p
Be-7 D vs. Detektor bez detektora 4	5,29	0,07

W wyniku rangowej analizy wariacji stężenia aktywności Be-7 nie stwierdzono istotnej zależności wyników pomiarowych ani od rodzaju konfiguracji filtrów powietrza, ani od rodzaju detektora. W przypadku badania rozkładów dla poszczególnych detektorów wynik testu Dunna różni się od wyniku testu Kruskala Wallisa, dlatego zdecydowano o powtórzeniu obu testów po usunięciu danych pomiarowych uzyskanych z detektora nr 4 (z uwagi na znacznie mniejszą liczebność grupy w porównaniu do pozostałych). Wynik powtórnego testu post hoc zgodził się z wynikiem testu Kruskala Wallisa.

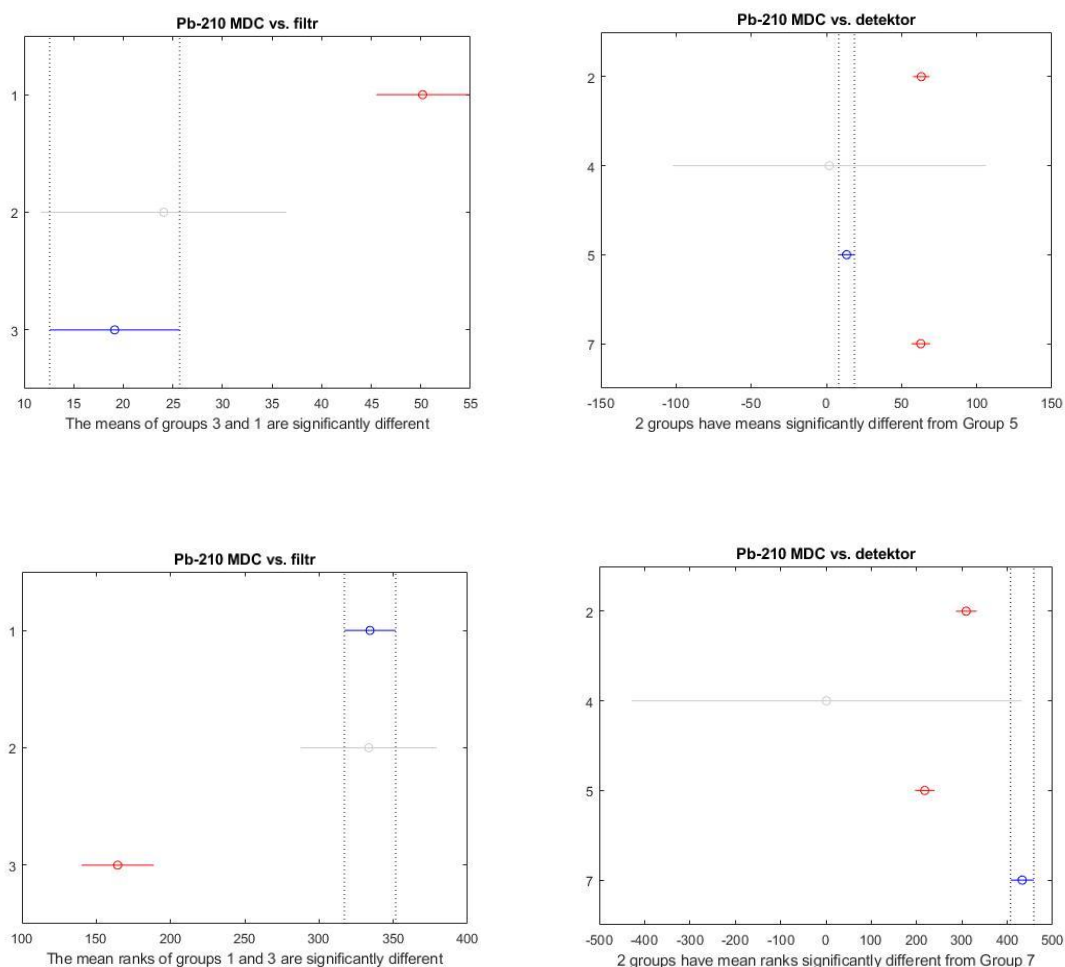
W wyniku rangowej analizy wariacji minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Be-7 stwierdzono zależność wyników pomiarowych zarówno od rodzaju detektora jak i konfiguracji filtrów powietrza.

Tabela 40. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Pb-210 od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza.

Porównanie	χ^2	p
Pb-210 C vs. Filtr	15,88	0,00
Pb-210 C vs. Detektor	74,06	0,00
Pb-210 MDC vs. Filtr	97,44	0,00
Pb-210 MDC vs. Detektor	144,52	0,00



Wykres 43. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Pb-210 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').

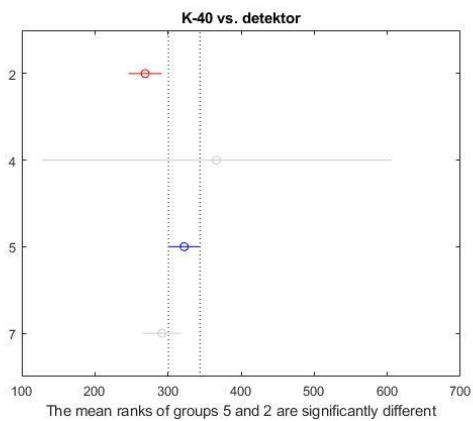
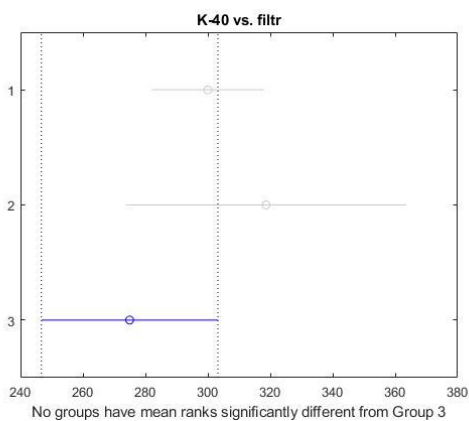
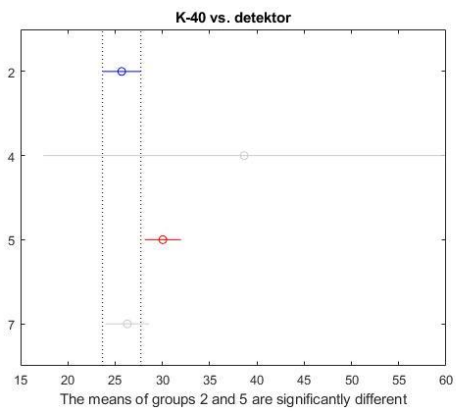
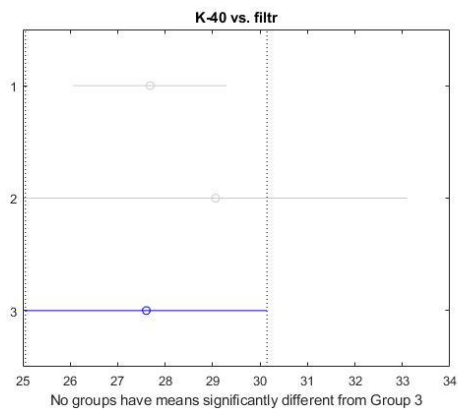


Wykres 44. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzanego stężenia aktywności Pb-210 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').

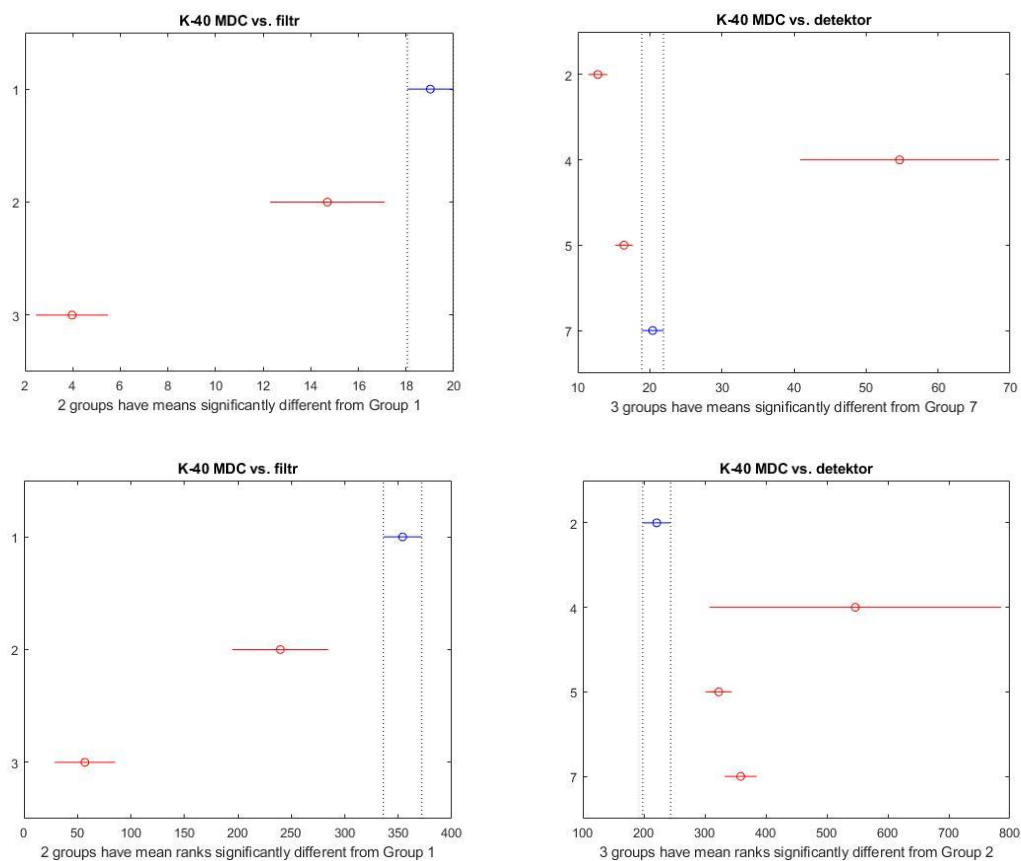
W wyniku rangowej analizy wariacji stężenia aktywności i minimalnego stężenia aktywności Pb-210 stwierdzono zależność rozkładów zarówno od rodzaju detektora jak i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza. W przypadku geometrii pomiarowej rozkłady zarówno C jak i MDC nie różnią się istotnie dla konfiguracji filtrów nr 1 i nr 2, natomiast istotnie różny jest rozkład dla konfiguracji nr 3.

Tabela 41. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzanego stężenia aktywności K-40 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza.

Porównanie	χ^2	p
K-40 C vs. Filtr	2,45	0,29
K-40 C vs. Detektor	11,55	0,01
K-40 MDC vs. Filtr	241,04	0,00
K-40 MDC vs. Detektor	68,65	0,00



Wykres 45. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności K-40 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').

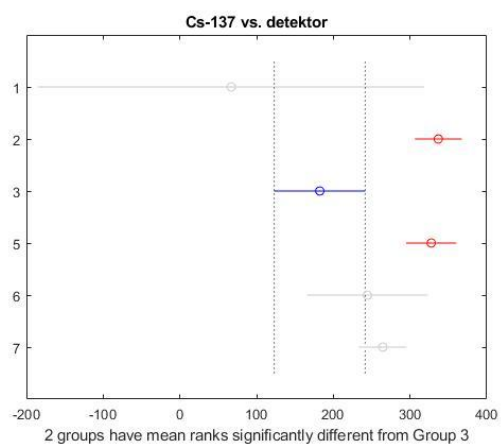
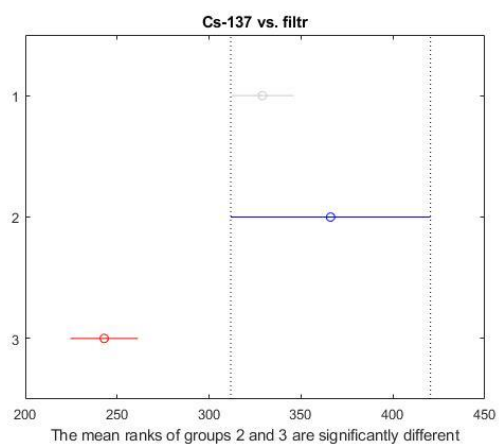
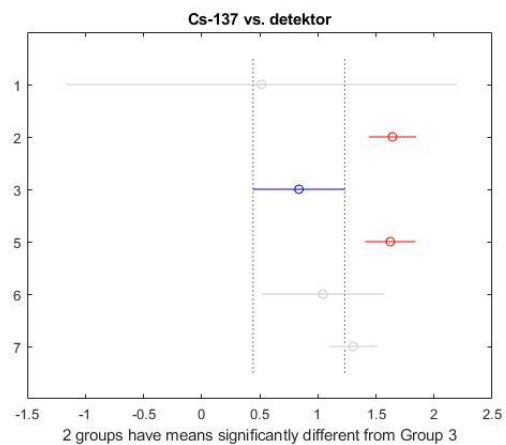
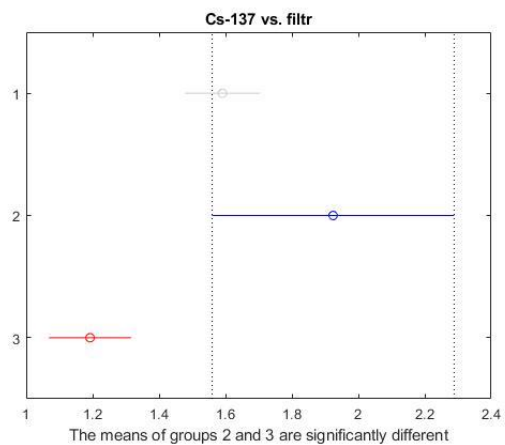


Wykres 46. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzalnego stężenia aktywności K-40 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').

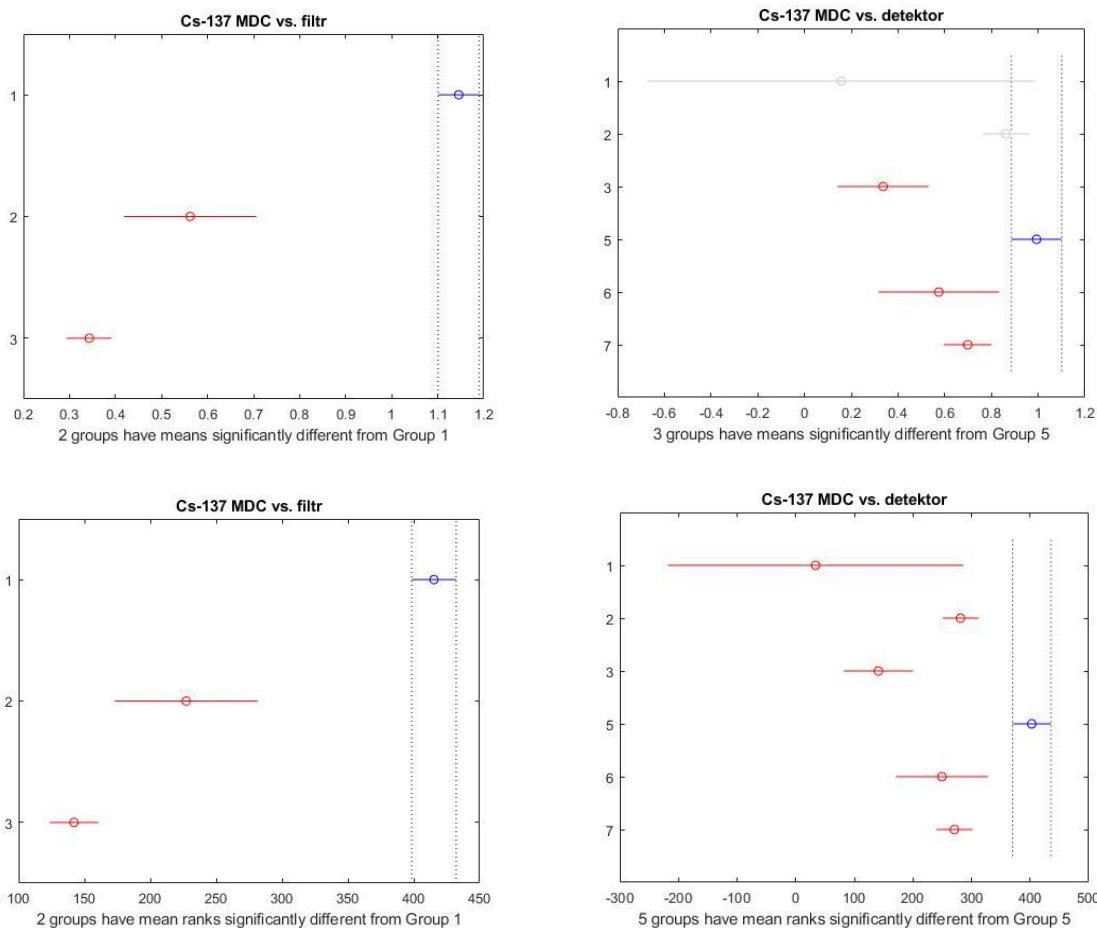
W wyniku rangowej analizy wariancji stężenia aktywności K-40 nie stwierdzono zależności rozkładu od rodzaju konfiguracji filtrów powietrza, zanotowano jednak zależność od rodzaju detektora. W przypadku rangowej analizy wariancji *MDC* K-40 stwierdzono zależność rozkładu zarówno od rodzaju filtra jak i rodzaju detektora, przy czym ze względu na rodzaj konfiguracji filtrów powietrza rozkłady wszystkich grup istotnie różnią się między sobą, natomiast ze względu na rodzaj detektora istotnie różny od pozostałych jest rozkład dla detektora nr 2.

Tabela 42. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Cs-137 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza.

Porównanie	χ^2	<i>p</i>
Cs-137 C vs. Filtr	40,07	0,00
Cs-137 C vs. Detektor	45,12	0,00
Cs-137 MDC vs. Filtr	348,14	0,00
Cs-137 MDC vs. Detektor	100,11	0,00



Wykres 47. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Cs-137 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').

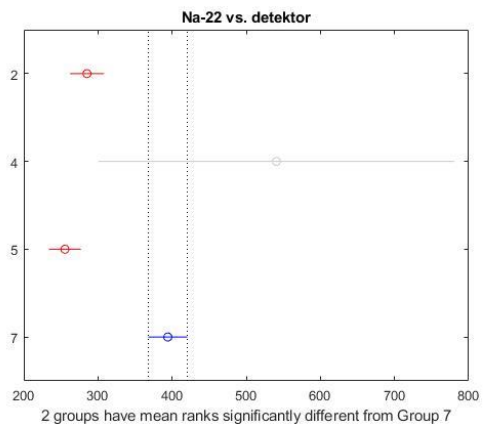
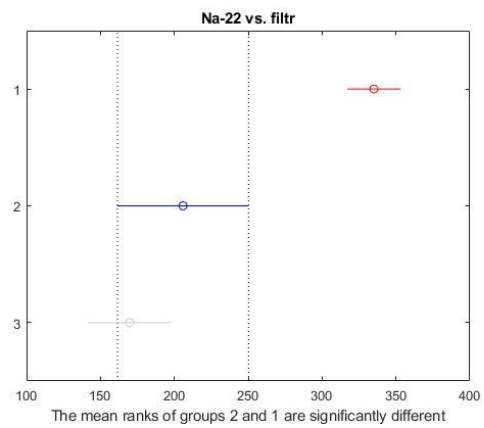
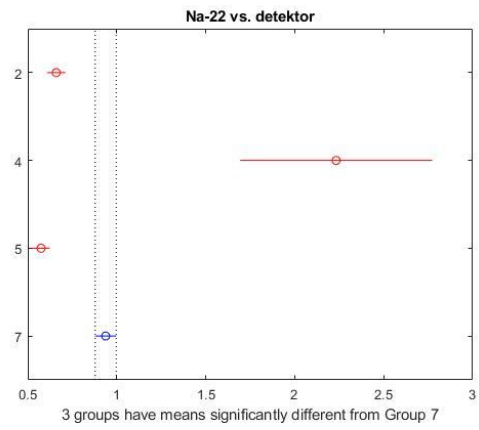
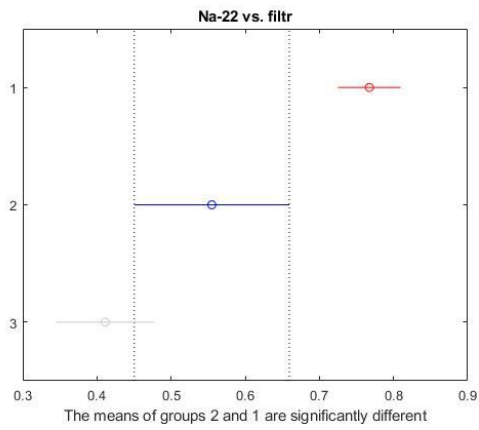


Wykres 48. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Cs-137 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').

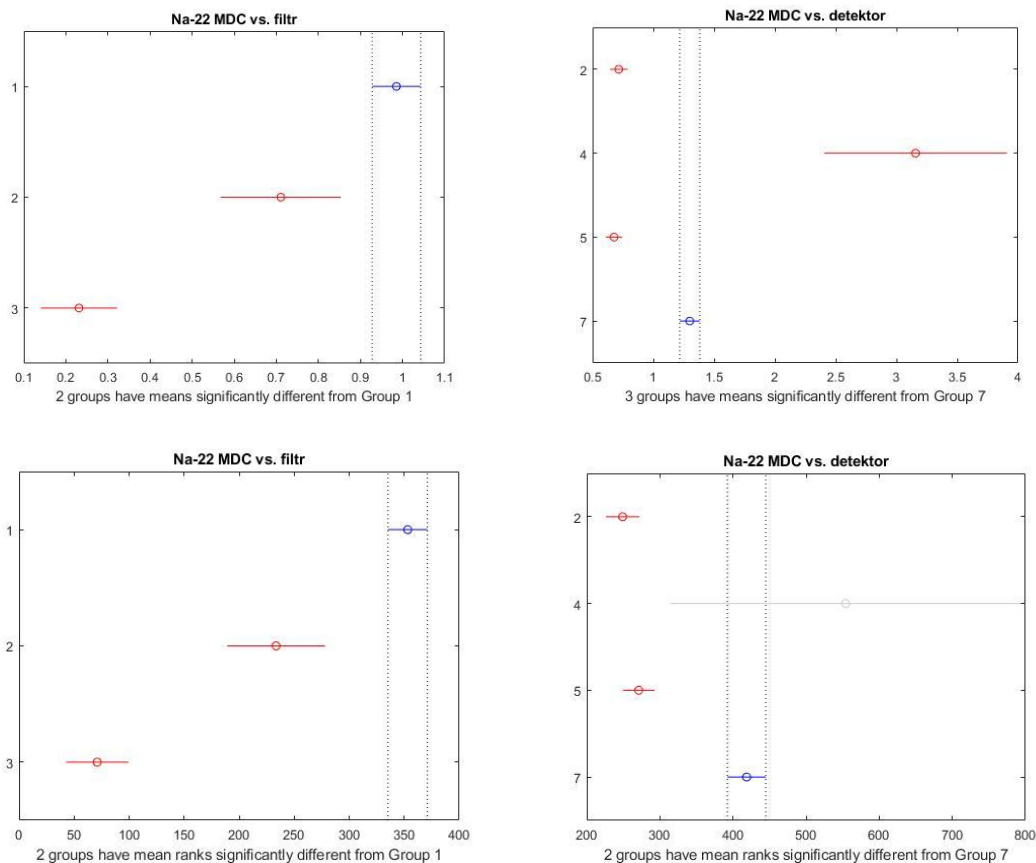
W wyniku rangowej analizy wariancji stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Cs-137 stwierdzono zależność rozkładów zarówno od rodzaju konfiguracji filtrów powietrza jak i rodzaju detektora, przy czym rozkłady stężenia Cs-137 ze względu na rodzaj konfiguracji filtrów powietrza nie różnią się istotnie pomiędzy konfiguracją nr 1 i konfiguracją nr 2.

Tabela 43. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Na-22 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza.

Porównanie	χ^2	<i>p</i>
Na-22 D vs. Filtr	88,21	0,00
Na-22 D vs. Detektor	64,55	0,00
Na-22 MDD vs. Filtr	220,58	0,00
Na-22 MDD vs. Detektor	94,87	0,00



Wykres 49. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Na-22 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').



Wykres 50. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Na-22 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').

W wyniku rangowej analizy wariancji stężenia aktywności oraz minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Na-22 stwierdzono zależność rozkładów zarówno od rodzaju konfiguracji filtrów powietrza jak i rodzaju detektora (zależność od detektora w dużej mierze wynika z różnej czułości detektorów oraz dużej liczby wyników będących poniżej limitu detekcji). W przypadku podziału na grupy ze względu na rodzaj konfiguracji filtrów powietrza dla stężenia aktywności Na-22 zaobserwowano istotnie różny rozkład jedynie dla filtra nr 1 (wykres 49).

Podsumowując, w wyniku rangowej analizy wariancji stężenia aktywności oraz minimalnego mierzalnego stężenia aktywności stwierdzono:

1. Rozkład stężenia aktywności Be-7 i K-40 nie zależy od konfiguracji filtrów powietrza
2. Rozkład stężenia aktywności Cs-137, Pb-210 i Na-22 zależy od konfiguracji filtrów powietrza, przy czym:
 - dla Pb-210 i Cs-137 rozkład dla konfiguracji nr 3 jest istotnie różny od pozostałych
 - dla Na-22 rozkład dla konfiguracji nr 1 jest istotnie różny od pozostałych
3. Rozkład stężenia aktywności Be-7 nie zależy od rodzaju detektora

4. Rozkład stężenia aktywności pozostałych izotopów zależy od rodzaju detektora, przy czym:

- dla Pb-210 rozkład dla detektora nr 5 istotnie różni się od rozkładu dla detektora nr 7 oraz od rozkładu dla detektora nr 2
- dla K-40 istotnie różnią się rozkłady dla detektora nr 2 i nr 5
- dla Cs-137 rozkład dla detektora nr 2 istotnie różni się od rozkładów dla detektorów nr 3 i nr 7, dodatkowo rozkład dla detektora nr 3 istotnie różni się jeszcze od rozkładu dla detektora nr 5
- dla Na-22 nie licząc mała liczebnej grupy dla detektora nr 4, istotnie różny od pozostałych jest jedynie rozkład dla detektora nr 7

5. Rozkład minimalnego mierzalnego stężenia aktywności (*MDC*) dla wszystkich rozważanych izotopów zależy od konfiguracji filtrów powietrza, przy czym:

- dla Cs-137, Be-7, Na-22 i K-40 wszystkie trzy rozkłady są istotnie różne
- Pb-210 rozkład dla konfiguracji nr 3 jest istotnie różny od pozostałych

6. Rozkład minimalnego mierzalnego stężenia aktywności dla wszystkich rozważanych izotopów zależy od rodzaju detektora, przy czym:

- dla Be-7 i K-40 istotnie różny od pozostałych jest jedynie rozkład dla detektora nr 2
- dla Cs-137 rozkład dla detektora nr 5 jest istotnie różny od wszystkich pozostałych grup, dodatkowo istotnie różny jest rozkład pomiędzy detektorem nr 3 i nr 2 oraz pomiędzy detektorem nr 3 i nr 7
- dla Pb-210 rozkłady istotnie różnią się pomiędzy grupami odpowiadającymi detektorom nr 2, nr 5 i nr 7
- dla Na-22 nie licząc mała liczebnej grupy dla detektora nr 4, istotnie różny od pozostałych jest jedynie rozkład dla detektora nr 7

Tak jak wspomniano we wstępie tego rozdziału, oprócz rangowej analizy wariancji przeprowadzono również analizę średnich wartości stężenia i minimalnego mierzalnego stężenia w zależności od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza. Przy pomiarach tak niskich aktywności, jak te mierzone w ramach tej pracy, wysokość limitu detekcji, a w związku z tym liczba wyników pomiarowych będących poniżej limitu detekcji ma istotny wpływ na wiarygodność wyników analiz statystycznych prowadzonych na rozważanym zbiorze danych.

W wyniku analizy średnich wartości minimalnego mierzalnego stężenia aktywności (biorąc pod uwagę bardzo małą liczebność grup dla detektora nr 1 i nr 4) w zależności od rodzaju detektora wyciągnięto następujące wnioski:

1. Najwyższy limit detekcji przy pomiarach aktywności Be-7, Na-22, K-40, Pb-210 został zaobserwowany dla detektora nr 7 (dla Pb-210 równie wysoki limit detekcji zaobserwowano dla detektora nr 2)

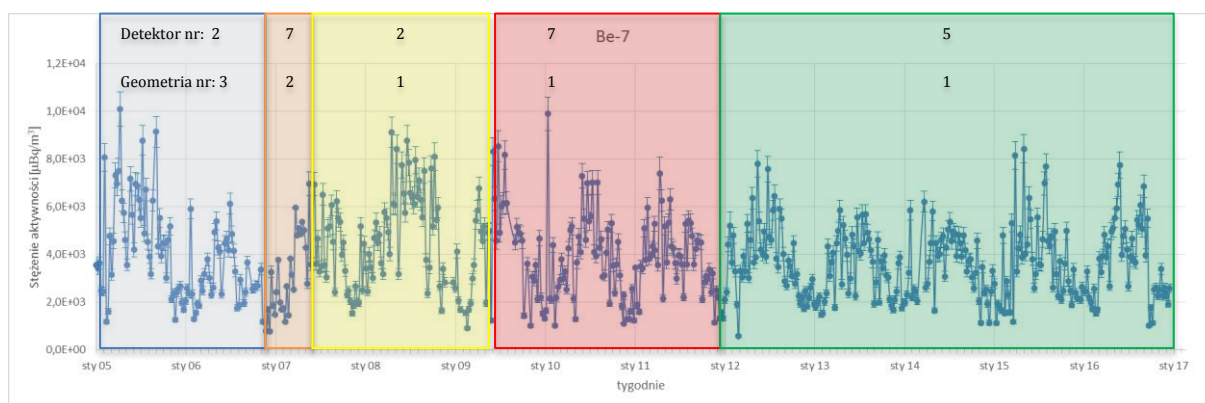
2. Najwyższy limit detekcji przy pomiarach aktywności Cs-137 został zaobserwowany dla detektora nr 5

3. Najniższy limit detekcji przy pomiarach aktywności Be-7 i Pb-210 został zaobserwowany dla detektora nr 5

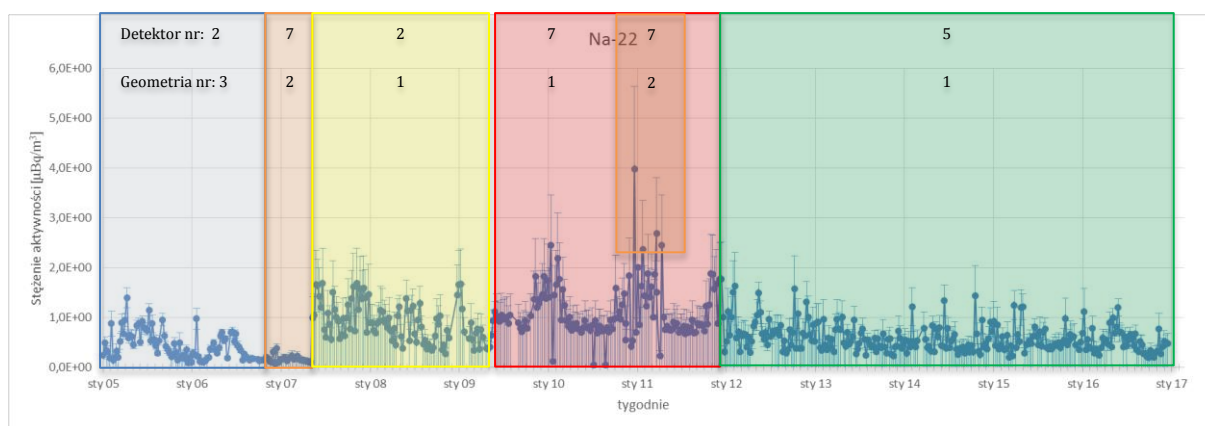
4. Najniższy limit detekcji przy pomiarach aktywności Cs-137 został zaobserwowany dla detektora nr 3

5. Najniższy limit detekcji przy pomiarach aktywności Na-22 i K-40 został zaobserwowany dla detektora nr 2 (dla Na-22 również niski limit detekcji zaobserwowano dla detektora nr 5)

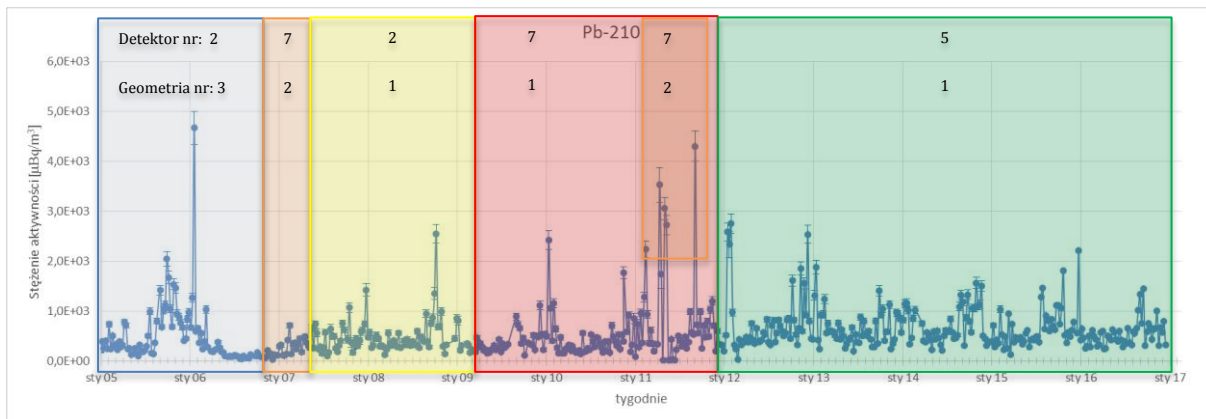
W wyniku analizy wariancji średnich wartości minimalnego mierzalnego stężenia aktywności w zależności od konfiguracji filtrów powietrza dla wszystkich rozważanych izotopów oprócz Be-7, najwyższy limit detekcji zaobserwowano dla konfiguracji nr 1, a najniższy dla konfiguracji nr 3. Aby odpowiednio zinterpretować powyższy wynik należy zbadać na jakich detektorach próbki mierzone były w danej konfiguracji. W tym celu sporządzono wykresy 51-55 zmienności stężenia aktywności izotopów z naniesioną informacją o rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów (uwzględniono najbardziej liczne grupy).



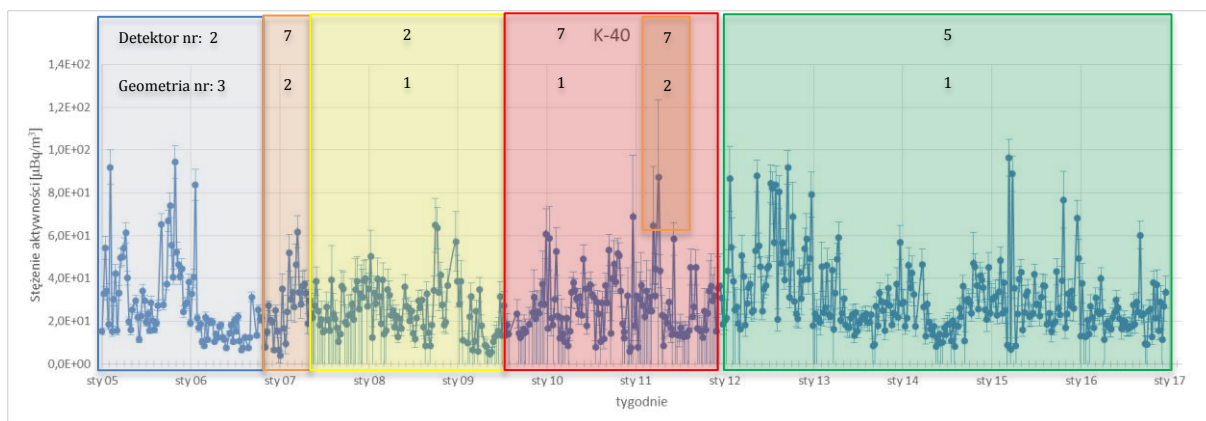
Wykres 51. Zmienność w czasie stężenia aktywności Be-7 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.



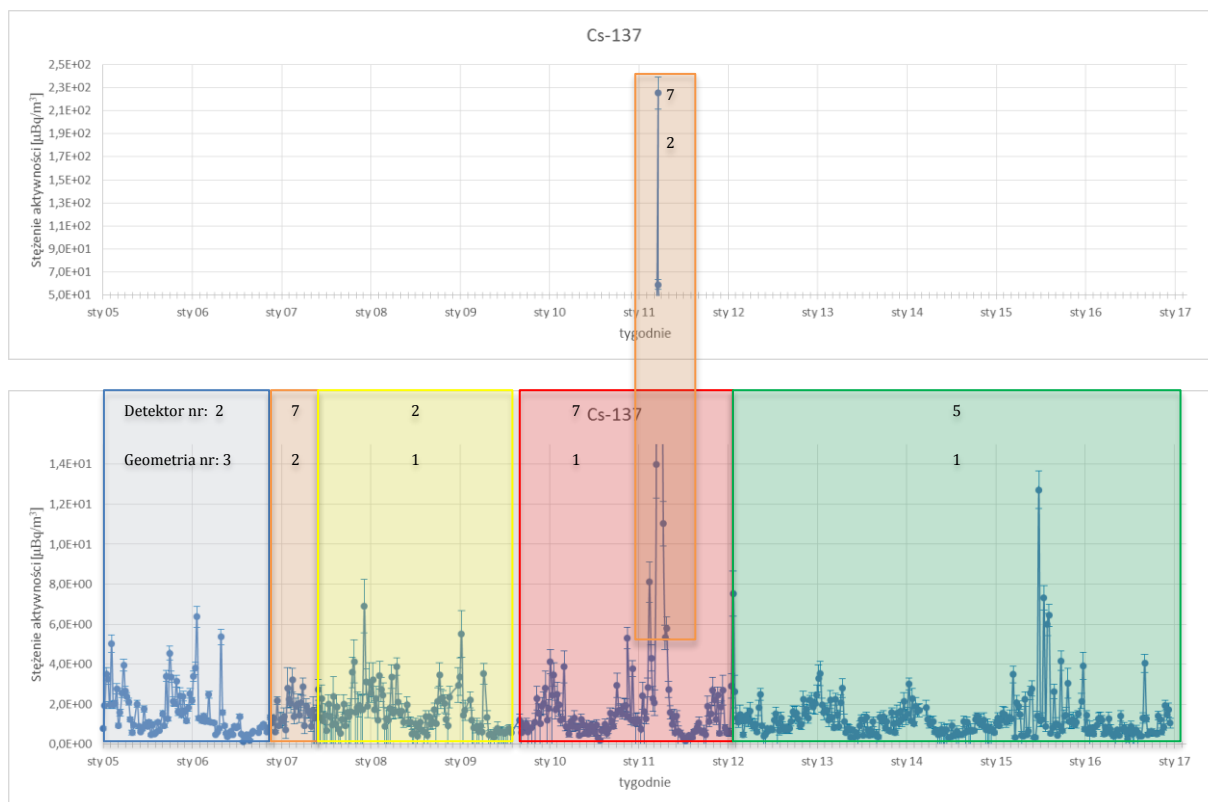
Wykres 52. Zmienność w czasie stężenia aktywności Na-22 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.



Wykres 53. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pb-210 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.



Wykres 54. Zmienność w czasie stężenia aktywności K-40 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.



Wykres 55. Zmienność w czasie stężenia aktywności Cs-137 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.

Na podstawie analizy wykresów 51-55 (przedstawiających wszystkie wyniki) oraz rangowej analizy wariancji (bez wyników dla okresu bezpośrednio po katastrofie w Fukuszymie) można stwierdzić, że spośród trzech rodzajów stosowanej konfiguracji filtrów, najlepsze wyniki pomiarowe otrzymano dla konfiguracji nr 3, tj. dla geometrii podwójnego filtra powietrza. Nie można natomiast wyciągnąć wniosku o przewadze pomiarów prowadzonych dla konfiguracji filtrów nr 1 i nr 2 (tj. o przewadze poboru próbek za pomocą stacji MASS i ASS). Prawdopodobnie najwyższy limit detekcji dla konfiguracji filtrów nr 1 (filtry ze stacji MASS) wynika z faktu, że duża część pomiarów w tej konfiguracji była prowadzona na detektorze nr 7, dla którego również zanotowano najwyższe limity detekcji.

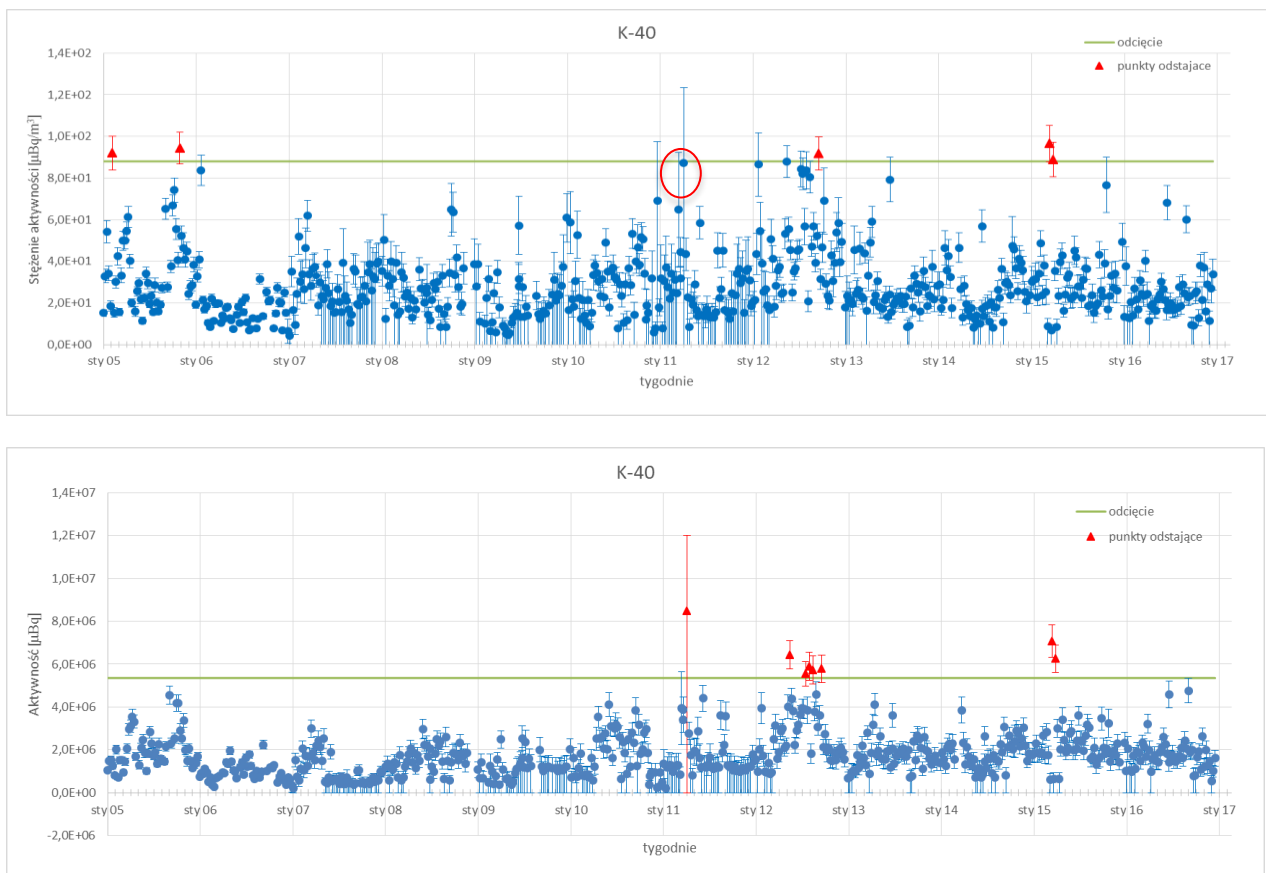
Podsumowując wykonane pomiary i przeprowadzone analizy, wyciągnięto wnioski, że dla tego typu pomiarów w przypadku Be-7, ani rodzaj filtru (ze stacji MASS lub ASS), ani rodzaj geometrii pomiaru (pojedynczy lub podwójny filtr powietrza), ani rodzaj detektora nie mają istotnego wpływu na wyniki. W przypadku pomiarów stężenia aktywności Pb-210 i K-40 najważniejszy jest wybór detektora (najlepszy detektor nr 5), natomiast dla Cs-137 i Na-22 istotna jest zarówno geometria pomiaru jak i rodzaj detektora (najlepsza geometria podwójnego filtra powietrza tj. nr 3 i detektor nr 1, który w 2018 roku zastąpił w pracy detektor nr 2). W przypadku minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Cs-137, najniższą średnią wartość (zaraz po detektorze nr 1) uzyskano dla detektora nr 3, na którym wszystkie pomiary wykonane były w geometrii podwójnego filtra powietrza, co może oznaczać, że większy niż wybór detektora, wpływ na obniżenie limitu detekcji ma zastosowanie geometrii podwójnego filtra powietrza.

4.2. Analiza obserwacji odległych

Jednym z najważniejszych etapów wstępnej analizy zbioru danych jest zbadanie źródeł występowania obserwacji nietypowych. Pozwala to na wyeliminowanie z dalszych analiz wyników błędnych, mogących zafałszować obraz badanego procesu. W przypadku danych pomiarowych analizowanych w ramach tej pracy, proces ten był szczególnie ważny z uwagi na konieczność oddzielenia obserwacji odległych będących wynikiem nietypowych zdarzeń (np. awaria EJ w Fukuszymie) od obserwacji będących wynikiem błędów pomiarowych. Do wstępnej identyfikacji obserwacji odległych użyto metody rozstępu międzykwartylowego Tukeya [82]. Po usunięciu ze zbioru danych punktów uznanych za błędne, powstałe luki uzupełniono prz pomocy interpolacji liniowej (wykresy 56-70).

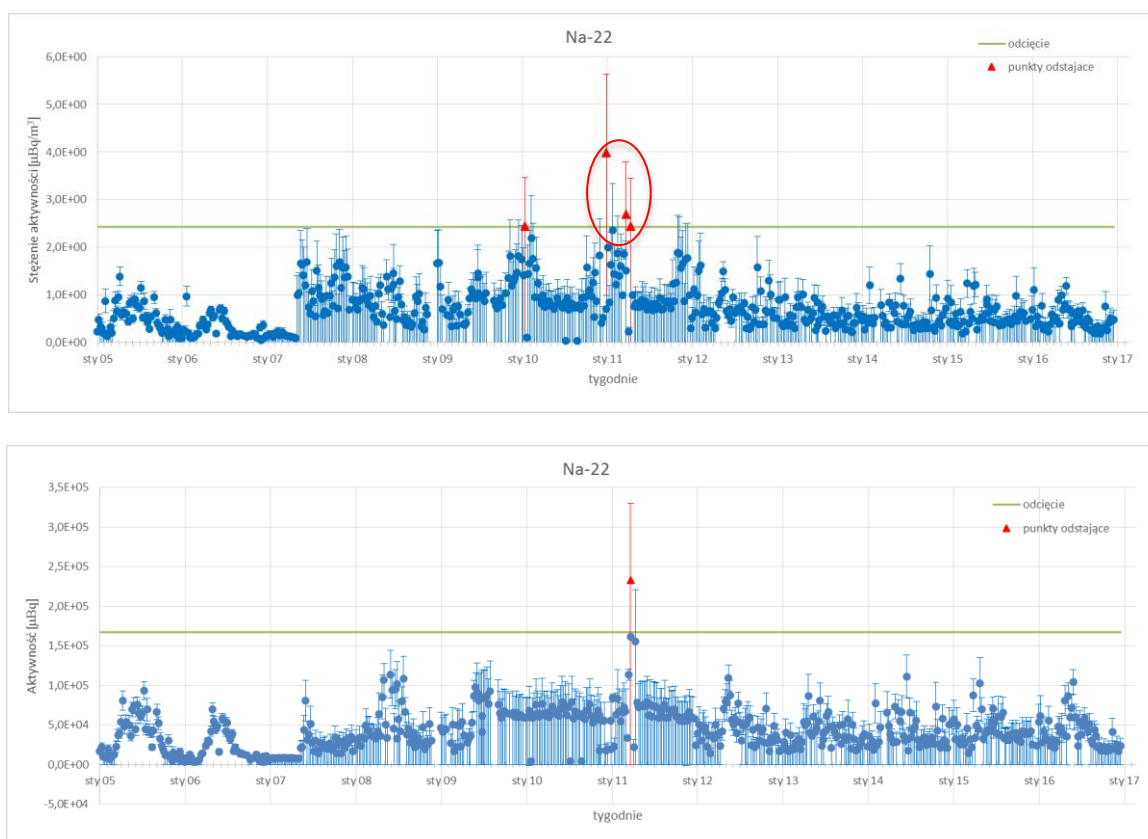
Identyfikacja oraz analiza obserwacji odstających dla pomiarów gamma spektrometrycznych tygodniowych próbek aerozoli atmosferycznych

W celu zaprezentowania wyników pomiarowych zakwalifikowanych przez algorytm jako obserwacje odległe przygotowano wykresy 56-59 zmienności stężenia aktywności oraz aktywności całkowitej w próbkach z zaznaczeniem punktów odstających oraz odcięcia stanowiącego granicę powyżej, której punkty zostały uznane za odległe. Następnie każdy punkt analizowano indywidualnie i podejmowano decyzję o jego ewentualnym usunięciu ze zbioru danych.



Wykres 56. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

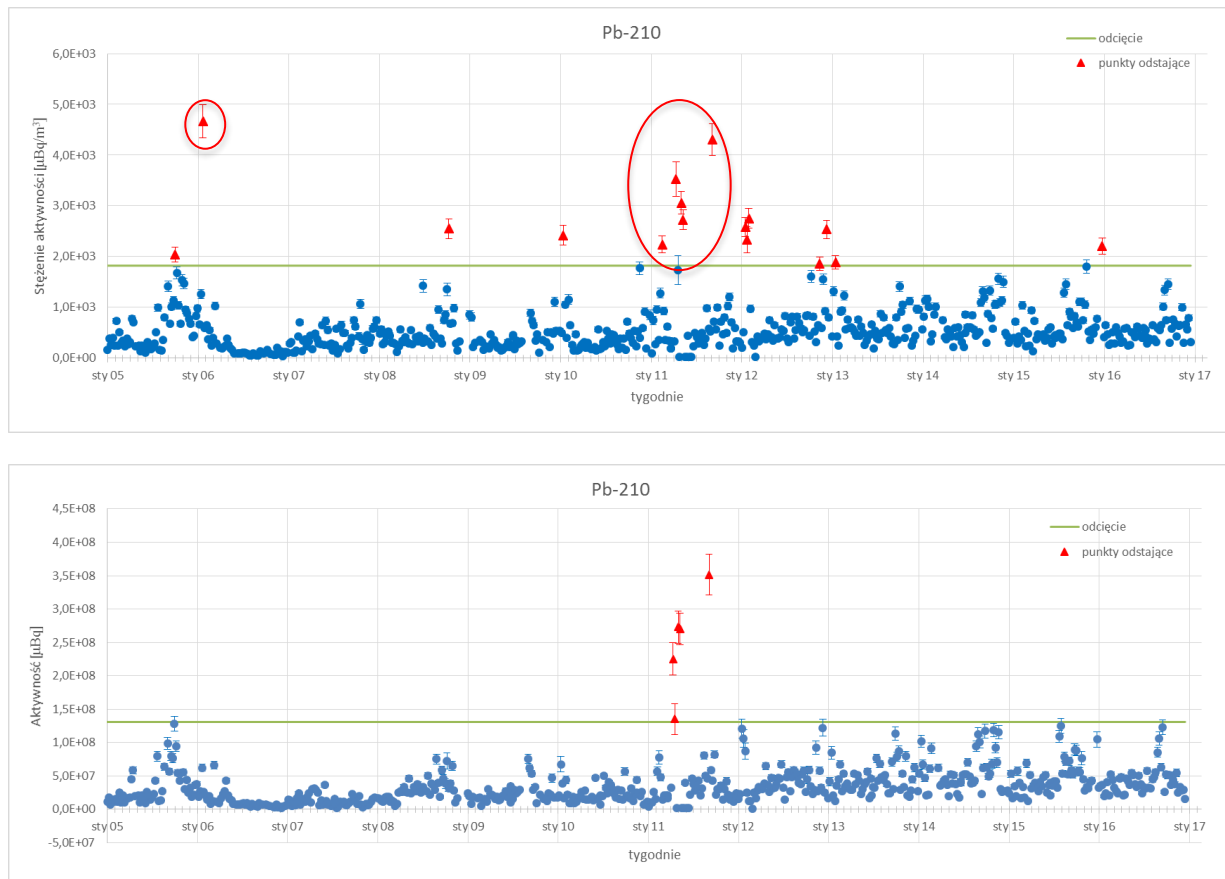
Zidentyfikowane obserwacje odstające stężenia aktywności K-40 w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych dotyczą następujących tygodni (identyfikator próbki oznaczony, jako rok*100+nr tygodnia): 200506, 200544, 201239, 201513, 201515. Obserwacje odstające aktywności całkowitej K-40 zarejestrowano z kolei dla próbek o numerach: 201115, 201221, 201230, 201232, 201234, 201239, 201513, 201515. Po analizie wartości odstających zdecydowano o nieuwzględnieniu w dalszych obliczeniach wyniku dla próbki o numerze 201115 (pobór od 2011-04-11 do 2011-04-18). Pomimo swojej wysokiej wartości wynik dla tej próbki jest poniżej limitu detekcji. Bardzo wysoki limit detekcji wynikał z częstszej niż tygodniowa wymiany filtrów w bezpośrednim okresie po awarii elektrowni jądrowej w Fukusimie. W tym przypadku na tygodniową próbkę składały się dwie o okresie poboru 11-14.04.11 oraz 14-18.04.11. Uznano, że wynik ten może prowadzić do błędnych wniosków płynących z kolejnych analiz. Dla pozostałych wyników zakwalifikowanych przez algorytm do obserwacji odstających nie było podstaw do uznania ich za niewiarygodne. Punkty odstające, które zostały usunięte ze zbioru danych zaznaczono na wykresach czerwonymi obwódkami.



Wykres 57. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

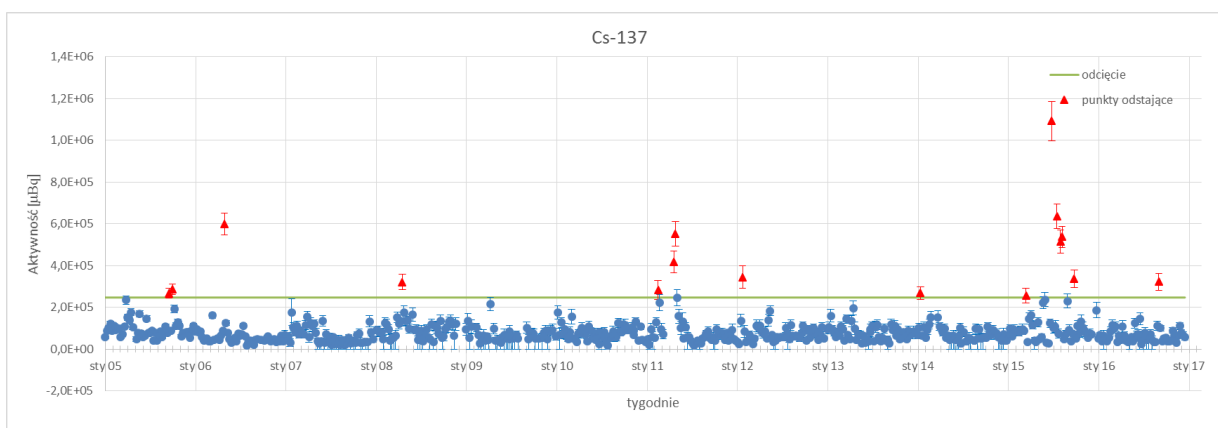
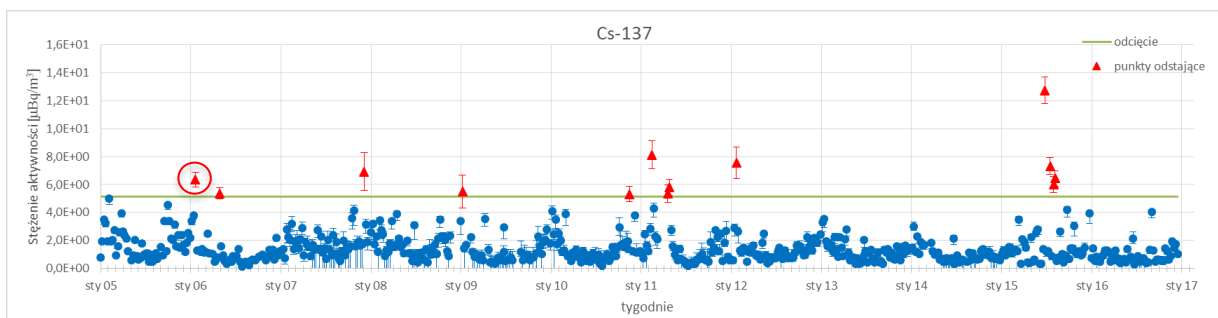
Zidentyfikowane obserwacje odstające stężenia aktywności Na-22 w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych dotyczą następujących tygodni: 201003, 201052, 201113, 201116. Obserwacje odstające aktywności całkowitej Na-22 zarejestrowano z kolei dla próbek o numerze: 201113. Wszystkie wyniki zakwalifikowane, jako obserwacje odstające dotyczą wartości będących poniżej limitu detekcji. Wysokość limitu detekcji dla pomiarów aktywności Na-22 w próbkach tygodniowych w głównej mierze zależała od wykorzystywanego detektora. Najwyższe wartości limitu detekcji zanotowano dla próbek mierzonych od połowy 2009 do końca 2011 roku,

kiedy pomiary wykonywane były przy użyciu detektora nr 7 (dokładną analizę zależności wyników od rodzaju detektora przedstawiono w punkcie 4.1 rozdziału II). Dla próbek z kwietnia 2011 dodatkowo wpływ na wysoki limit detekcji miał, tak jak w przypadku K-40 skrócony czas poboru pojedynczej próbki. Z uwagi na możliwość zafałszowania rezultatów kolejnych analiz zdecydowano usunąć wszystkie powyższe obserwacje odstające z dalszych obliczeń.



Wykres 58. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

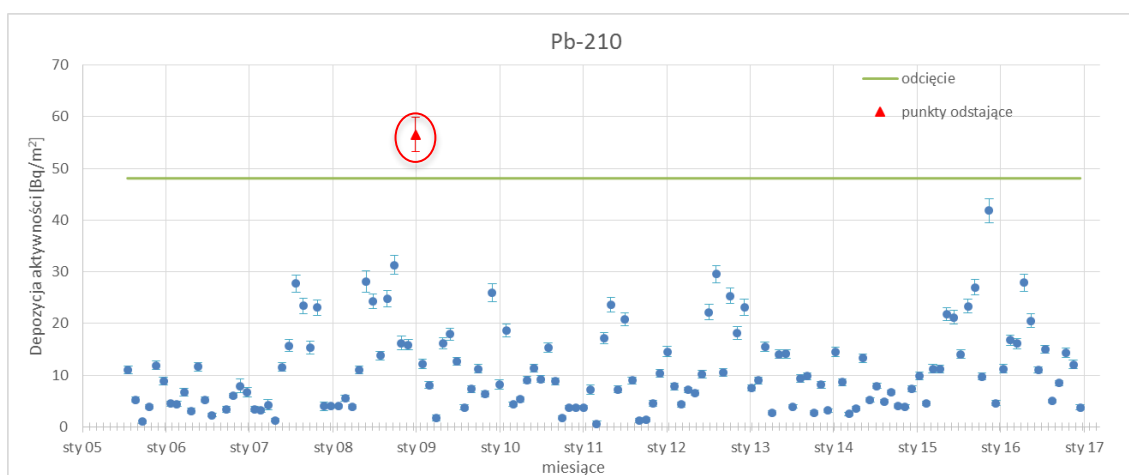
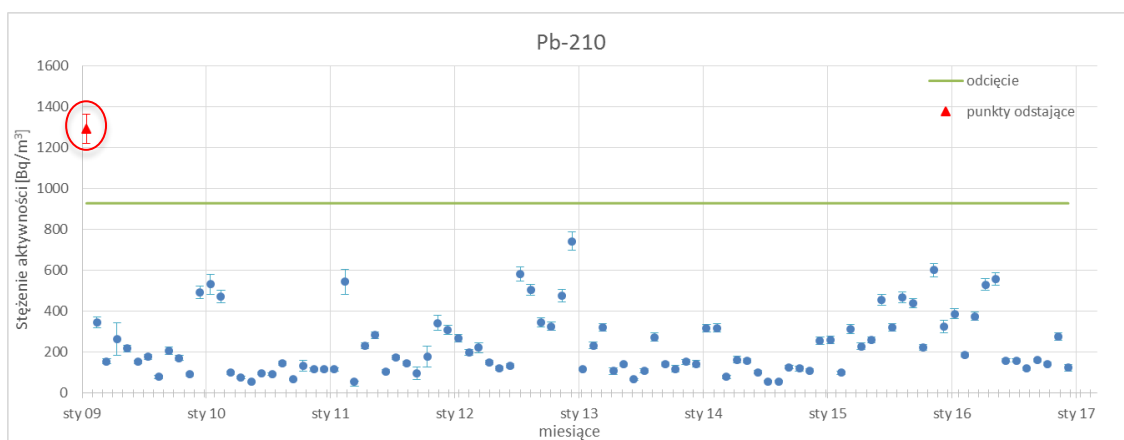
Zidentyfikowane obserwacje odstające stężenia aktywności Pb-210 w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych dotyczą następujących tygodni: 200540, 200604, 200842, 201003, 201108, 201116, 201119, 201120, 201137, 201204, 201205, 201206, 201247, 201251, 201304, 201602. Obserwacje odstające aktywności całkowitej Pb-210 zarejestrowano z kolei dla próbek o numerach: 201116, 201117, 201119, 201120, 201137, 201449. Po analizie obserwacji odstających odrzucono wynik dla próbki o numerze 200604, który uznano za niewiarygodny z uwagi na budzącą wątpliwość wartość zanotowanego przepływu powietrza. Ponadto w dalszych analizach nie uwzględniono grupy wyników z 2011 roku, które uznano za niewiarygodne z uwagi na problemy techniczne jakie wystąpiły podczas pomiarów. Dla pozostałych punktów wytypowanych przez algorytm, jako wartości odległe nie było podstaw do uznania ich za błędy grube.



Wykres 59. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Cs-137 w próbkach aeroszli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające. Na wykresie pominięto okres bezpośrednio po awarii EJ w Fukuszmie.

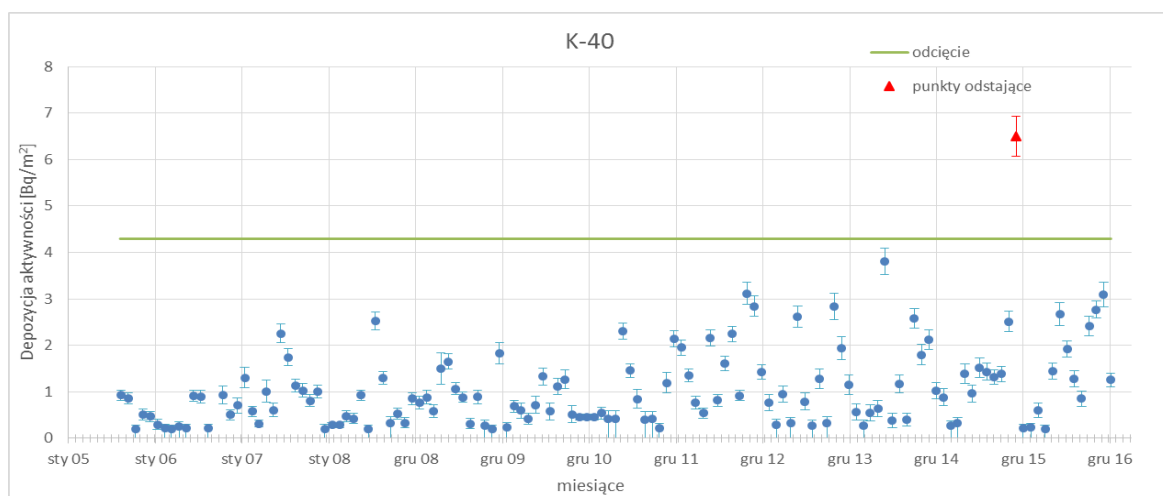
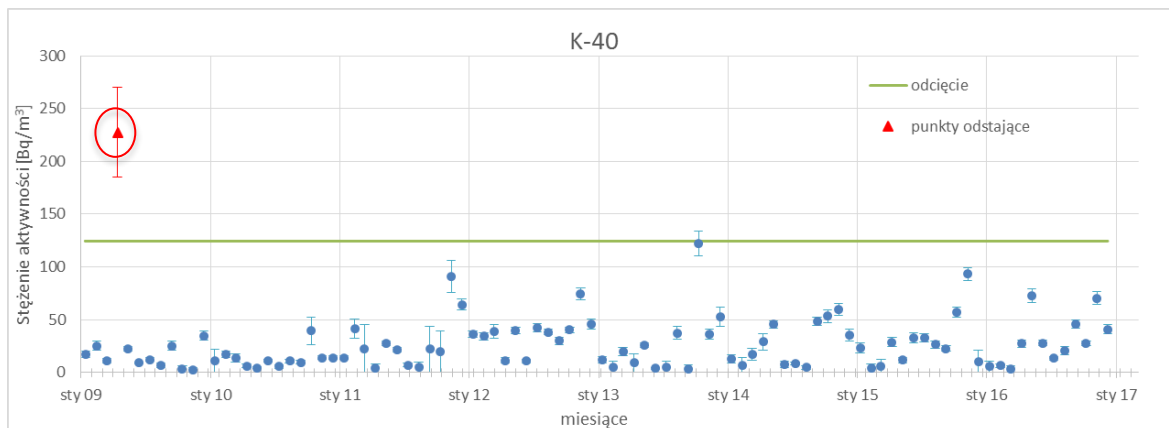
Zidentyfikowane obserwacje odstające stężenia aktywności Cs-137 w tygodniowych próbkach aeroszli atmosferycznych dotyczą następujących tygodni 200604, 200618, 200750, 200903, 201048, 201108, od 201112 do 201118, 201205, 201528, 201531, 201533, 201534. Obserwacje odstające aktywności całkowitej Cs-137 zarejestrowano z kolei dla próbek o numerach: 200538, 200540, 200618, 200817, 201108, od 201112 do 201119, 201205, 201404, 201513, 201528, 201531, 201533, 201534, 201541, 201638. Tak jak w przypadku Pb-210 zdecydowano usunąć z dalszych analiz wynik stężenia aktywności Cs-137 w próbce o numerze 200604 z uwagi na niewiarygodną wartość zanotowanej objętości powietrza. Pozostałe wyniki uznano za wiarygodne. Podwyższone wartości stężenia i depozycji Cs-137 w próbkach o numerach od 201112 do 201119 (od 2011-03-21 do 2011-05-17) wynikają z uwolnień Cs-137 podczas awarii elektrowni jądowej w Fukuszmie.

Identyfikacja oraz analiza obserwacji odstających dla pomiarów gamma spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego



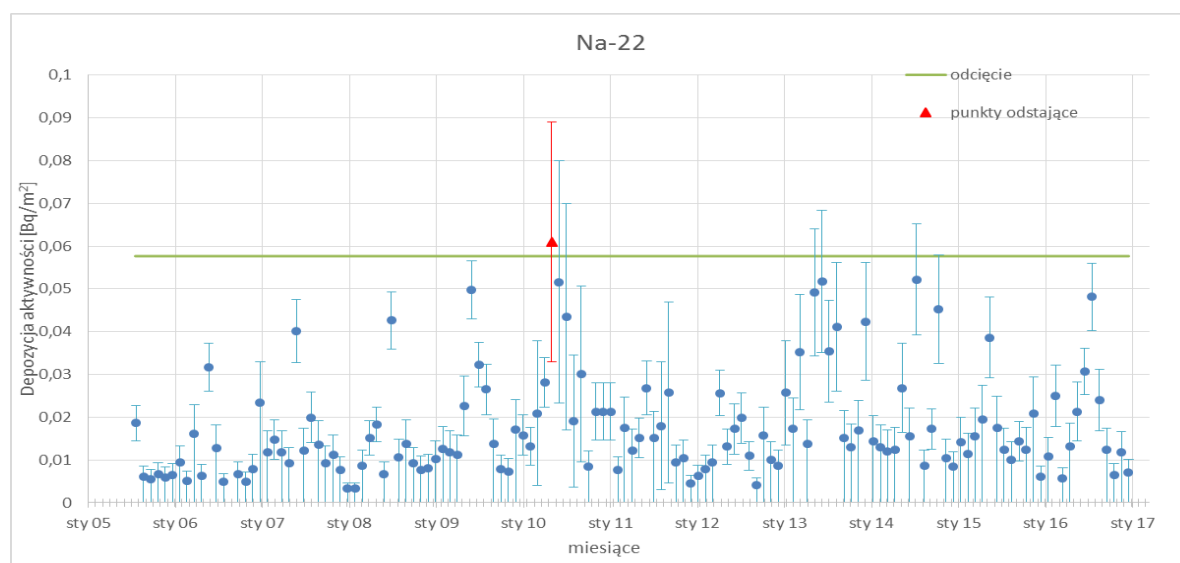
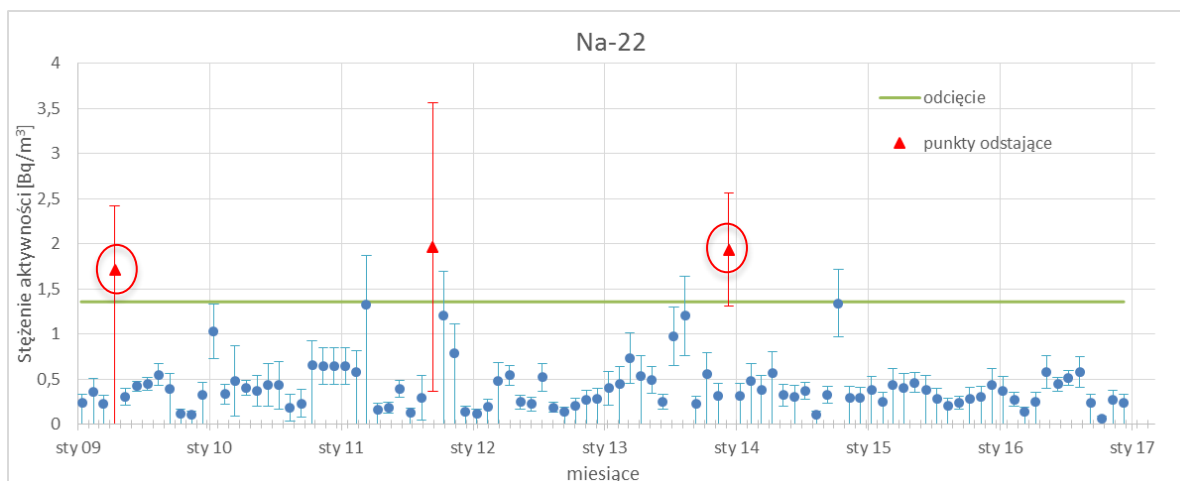
Wykres 60. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

Identyfikacja obserwacji odstającej wartości stężenia i depozycji aktywności Pb-210 w próbce całkowitego opadu atmosferycznego zebranej w styczniu 2009. Po powtórnej analizie widma, z uwagi na jego złą jakość (spowodowaną problemami technicznymi z detektorem), uznano uzyskany wynik za mało wiarygodny i usunięto go z dalszych analiz.



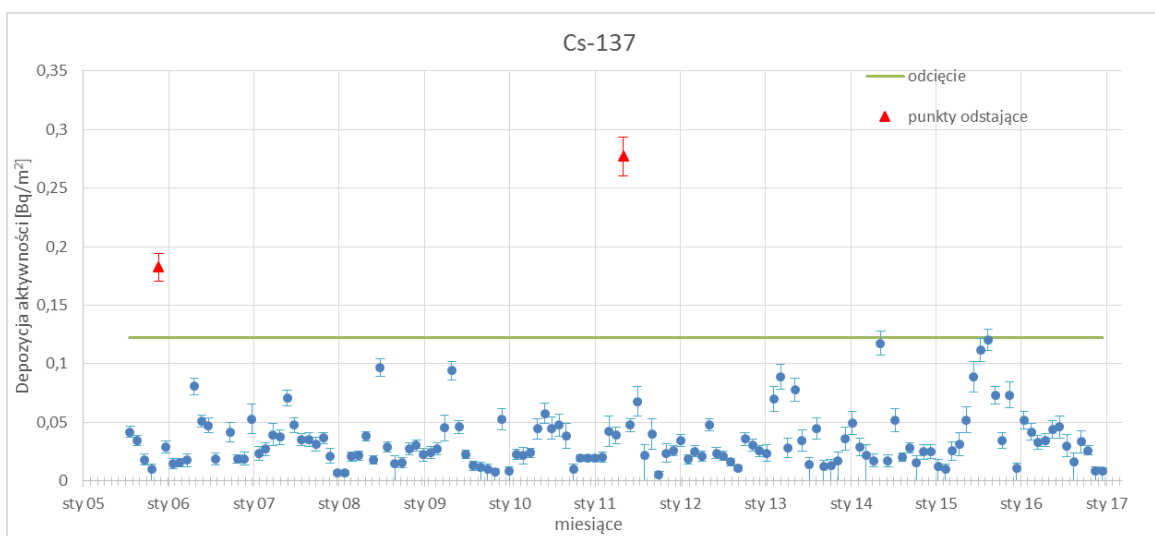
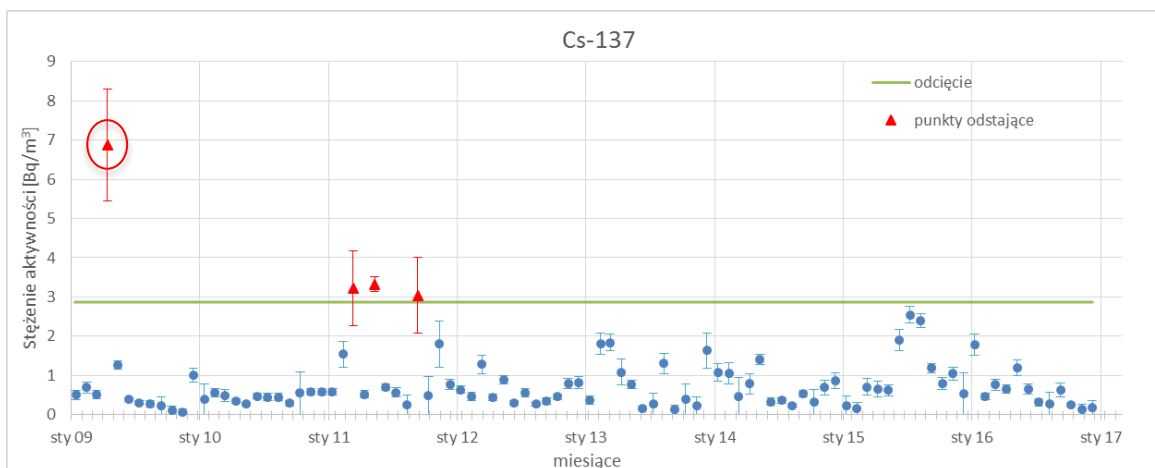
Wykres 61. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

Identyfikacja obserwacji odstającej stężenia aktywności K-40 w próbce całkowitego opadu atmosferycznego zebranej w kwietniu 2009 roku oraz depozycji aktywności K-40 w próbce pochodzącej z listopada 2015 roku. Uznano, że wysokie stężenie aktywności K-40 w kwietniu 2009 roku (ze względu na bardzo małą wartość zanotowanej objętości opadów) może wprowadzać znaczące zaburzenia w kolejnych analizach i usunięto ten wynik ze zbioru danych. W przypadku wyniku depozycji aktywności K-40 w próbce pochodzącej z listopada 2015 roku nie było podstaw do jego usunięcia.



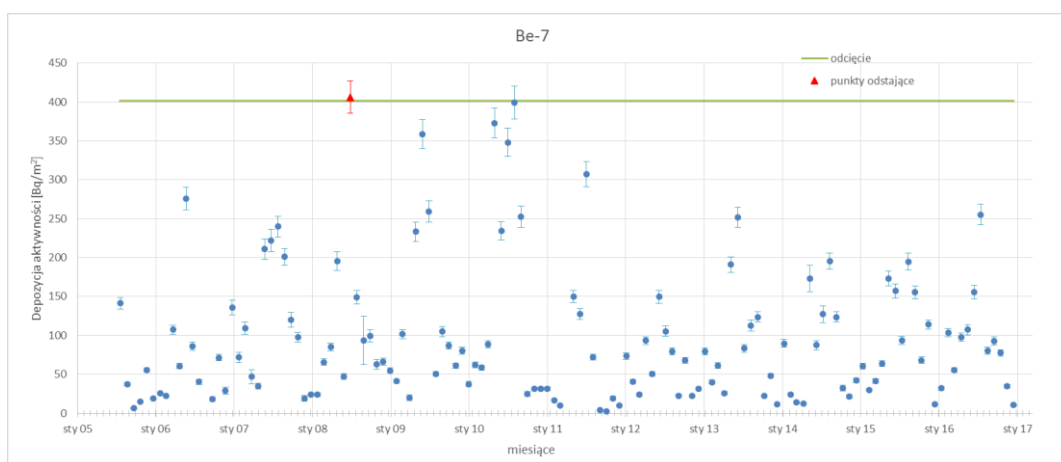
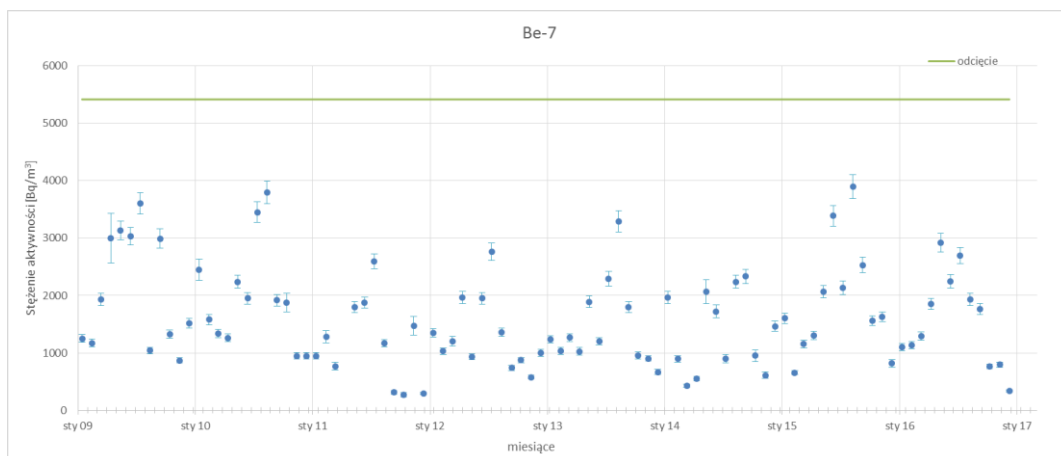
Wykres 62. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

Identyfikacja obserwacji odstających stężenia aktywności Na-22 w próbkach zebranych w kwietniu 2009 roku, wrześniu 2011 roku i grudniu 2013 roku oraz depozycji aktywności Na-22 w maju 2010 roku. Tak jak w przypadku K-40 wartość stężenia Na-22 w kwietniu 2009 roku została uznana za potencjalne źródło zaburzeń i usunięto ją z dalszych analiz. Wartość stężenia aktywności Na-22 dla próbki zebranej w grudniu 2013 również została odrzucona w dalszych analizach ze względu na zidentyfikowanie błędu, który wystąpił podczas zapisu wyniku analizy widma spektrometrycznego. Rzeczywista wartość stężenia aktywności Na-22 w tej próbce była poniżej limitu detekcji. W przypadku wyników stężenia aktywności Na-22 w próbce z września 2011 oraz depozycji aktywności Na-22 w próbce z maja 2010 nie było podstaw do uznania ich za błędne.



Wykres 63. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

Identyfikacja obserwacji odstających stężenia aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego pochodzących z: kwietnia 2009, marca 2011, maja 2011, września 2011 oraz depozycji aktywności Cs-137 w próbkach z grudnia 2005 oraz maja 2011. Wynik stężenia aktywności Cs-137 w kwietniu 2009 roku, podobnie jak dla K-40 i Na-22 został uznany za potencjalne źródło zafałszowań i odrzucony w dalszych analizach. Pozostałe wyniki uznano za wiarygodne. Wysokie stężenie oraz depozycja aktywności w marcu i maju 2011 związane są z uwolnieniem Cs-137 do atmosfery podczas awarii elektrowni jądrowej w Fukusimie (11.03.2011).

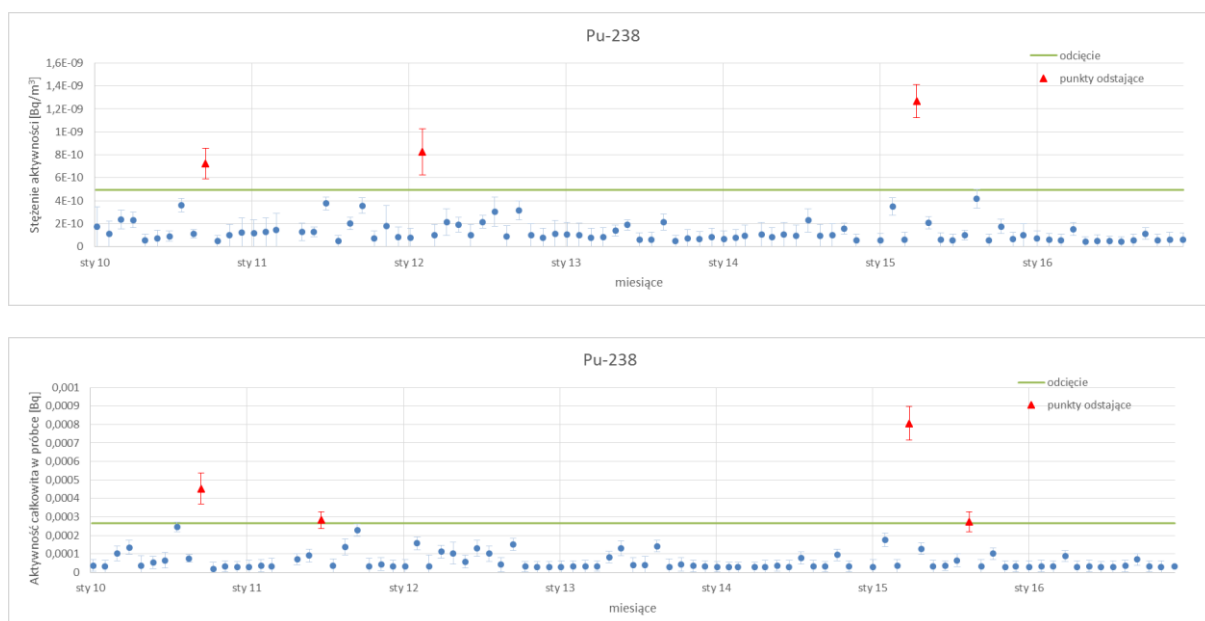


Wykres 64. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

W przypadku Be-7 na podstawie analizy obserwacji odstających wszystkie uzyskane wyniki uznano za wiarygodne i uwzględniono je w dalszych analizach.

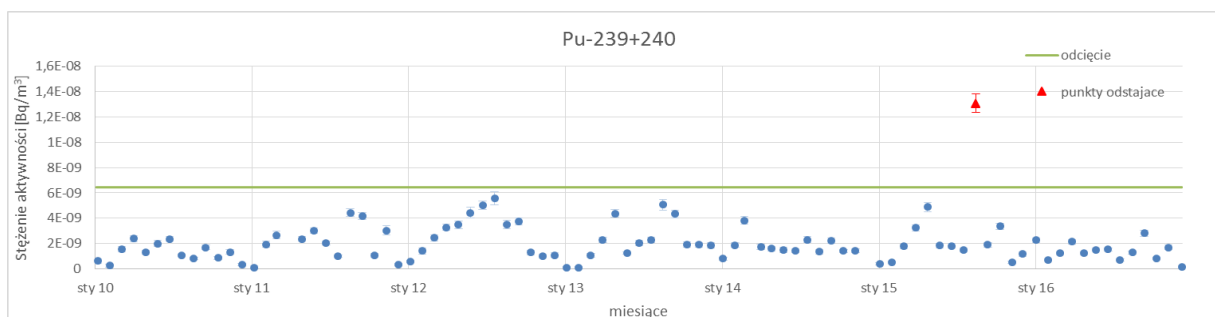
Z uwagi na bardzo małą objętość całkowitego opadu atmosferycznego zebranego w kwietniu 2009 roku, w dalszych analizach pominięto również stężenia aktywności Pb-210 oraz Be-7 dla tego okresu.

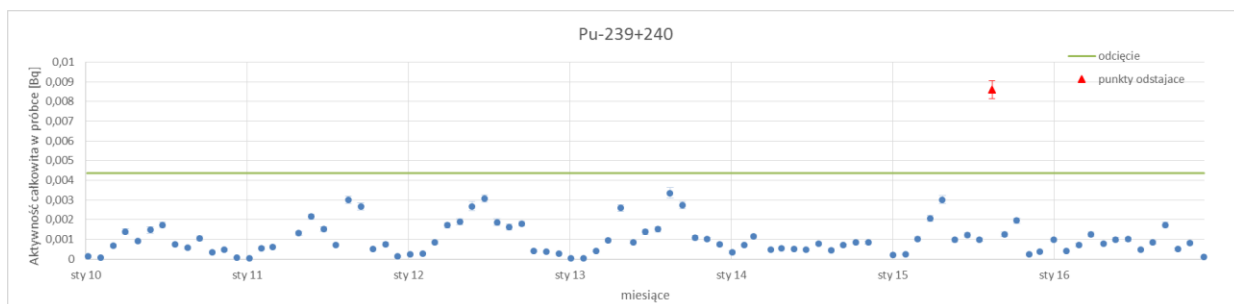
Identyfikacja oraz analiza obserwacji odstających dla pomiarów alfa spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych



Wykres 65. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

Zidentyfikowane obserwacje odstające stężenia aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych dotyczą okresów poboru od 2010-09-13 do 2010-10-11, od 2012-01-30 do 2012-02-27 oraz od 2015-03-23 do 2015-04-20. Z kolei wartości odstające aktywności całkowitej Pu-238 zostały zaobserwowane w okresach poboru od 2010-09-13 do 2010-10-11, od 2011-06-20 do 2011-07-18, od 2015-03-23 do 2015-04-20 oraz od 2015-08-10 do 2015-09-07. Wszystkie uzyskane wyniki uznano za wiarygodne. Najwyższa zaobserwowana wartość zarówno stężenia jak i depozycji aktywności dotyczy okresu na przełomie marca i kwietnia 2015 roku.

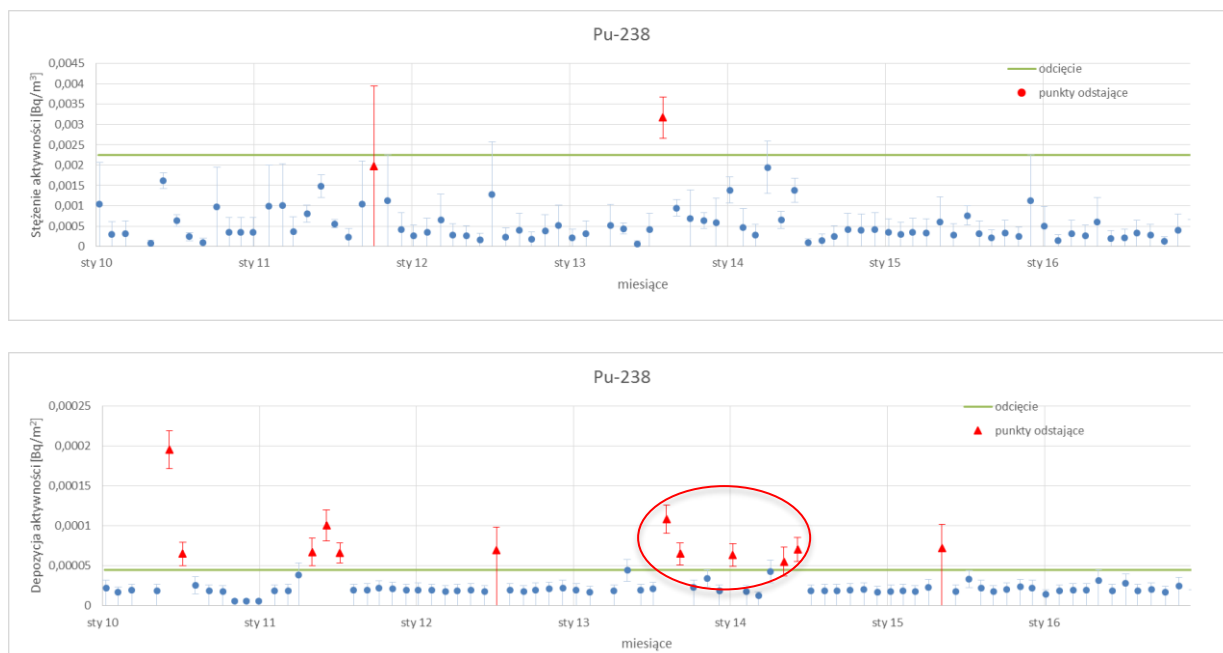




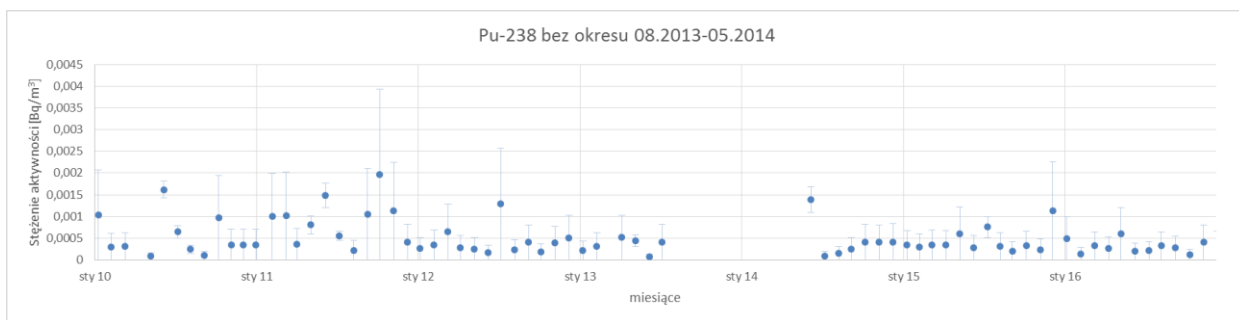
Wykres 66. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

Jedyna zidentyfikowana obserwacja odstająca stężenia aktywności i aktywności całkowitej Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych dotyczy okresu poboru od 2015-08-10 do 2015-09-07. Nie było podstaw do uznania tego wyniku za niewiarygodny. W okresie na przełomie sierpnia i września 2015 zanotowano również wyjątkowo wysokie stężenia aktywności Cs-137 w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych. Omówienie tego przypadku znajduje się w rozdziale „Dyskusja wyników i wnioski”.

Identyfikacja oraz analiza obserwacji odstających dla pomiarów alfa spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego

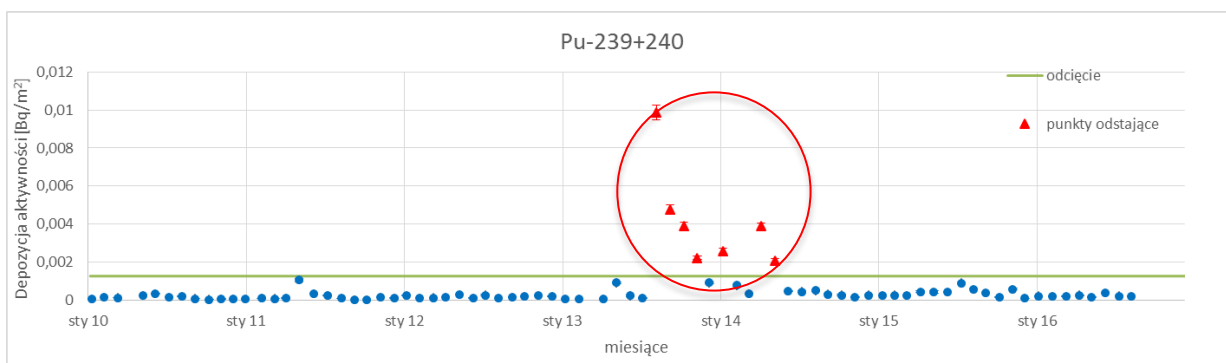
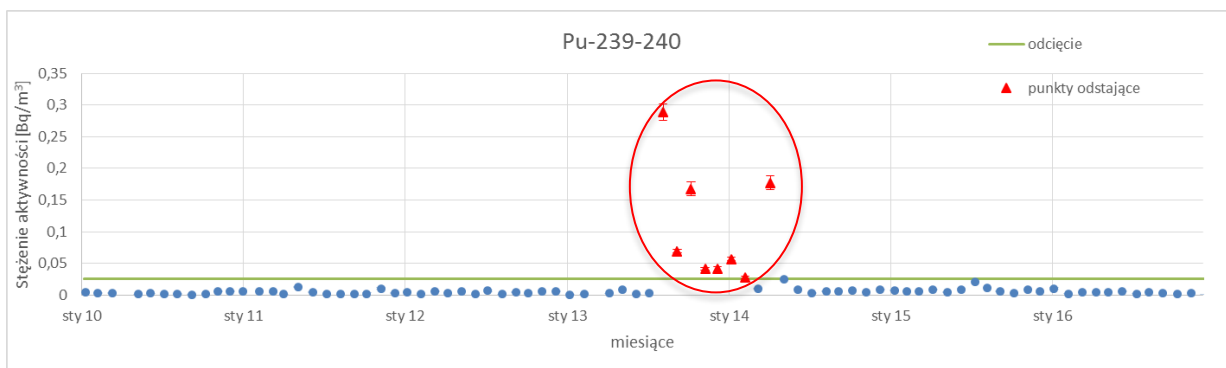


Wykres 67. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.

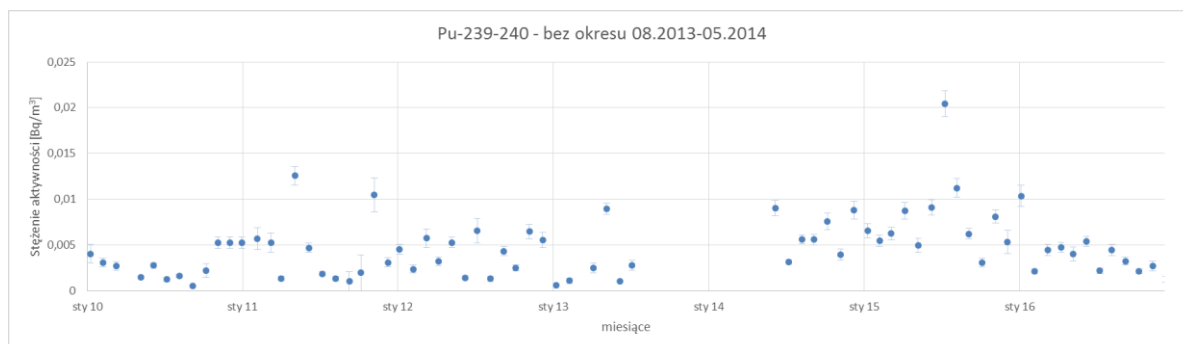


Wykres 68. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po usunięciu danych z okresu 08.2013-05.2014.

Identyfikacja obserwacji odstających dla stężenia aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego zebranych w październiku 2011 roku oraz w sierpniu 2013 roku. Wyznaczone stężenie aktywności Pu-238 w próbce z października 2011 roku znalazło się poniżej limitu detekcji, a jego wartość przyjęto, jako MDC/2. W tym przypadku wysokie MDC związane było z małą objętością próbki. W związku z kontaminacją pracowni radiochemicznej izotopami Pu-239+240 i Pu-238 na przełomie 2013 i 2014, tj. w okresie w którym przygotowywano próbki opadu atmosferycznego do pomiarów gamma spektrometrycznych, wyniki z tego okresu (08.2013-05.2014) uznano za niewiarygodne i zdecydowano o ich usunięciu ze zbioru danych. W przypadku pozostałych wyników nie było podstaw do ich usunięcia.



Wykres 69. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.



Wykres 70. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po usunięciu danych z okresu 08.2013-05.2014.

Zidentyfikowane obserwacje odstające dotyczą wyników stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego zbieranych w okresie od sierpnia 2013 roku do maja 2014 roku. W związku z kontaminacją pracowni radiochemicznej izotopami plutonu na przełomie 2013 i 2014, otrzymane wyniki uznano za niewiarygodne i zdecydowano o ich usunięciu ze zbioru danych.

4.3. Analiza korelacji wzajemnych między izotopami gamma promieniotwórczymi w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

W celu zbadania wzajemnych zależności pomiędzy stężeniem i depozycją aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego wyznaczono siłę korelacji za pomocą korelacji rang Spearmana. Kolorem zielonym zaznaczono korelacje, dla których współczynnik R był większy bądź równy 0,4. Wartość tę przyjęto, jako granicę pomiędzy zależnością słabą ($|R| < 0,4$), a zależnością umiarkowaną ($|R| \geq 0,4$) [73,74]. Do każdej wartości R podano współczynnik istotności p. Współczynniki korelacji R uznawano za istotne statystycznie, jeśli wartość współczynnika p była mniejsza niż 0,05. Jeśli $|R| \geq 0,6$ (korelacja wysoka) dodatkowo sporządzano wykres rozrzutu skorelowanych danych.

Tabela 44. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,00	0,15	0,45	-0,12	0,40
Be-7		1,00	0,05	0,01	-0,11
Cs-137			1,00	0,22	0,38
Na-22				1,00	0,07
K-40					1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	0,00	0,15	0,00	0,25	0,00
Be-7		0,00	0,66	0,91	0,28
Cs-137			0,00	0,03	0,00
Na-22				0,00	0,48
K-40					0,00

Tabela 45. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,00	0,59	0,41	0,19	0,42
Be-7		1,00	0,50	0,59	0,35
Cs-137			1,00	0,39	0,46
Na-22				1,00	0,30
K-40					1,00

p	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40
Pb-210	0,00	0,00	0,00	0,03	0,00
Be-7		0,00	0,00	0,00	0,00
Cs-137			0,00	0,00	0,00
Na-22				0,00	0,00
K-40					0,00

W tabelach 44 i 45 przedstawiono korelacje wzajemne między stężeniem i depozycją aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Spośród korelacji, dla których współczynnik $R \geq 0,4$ najwyższą korelację zanotowano między depozycją aktywności Be-7 i Na-22 oraz Pb-210 i Be-7.

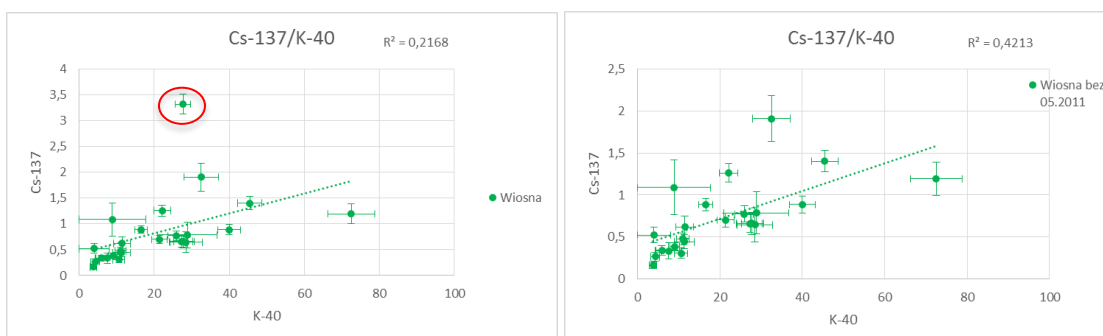
W następnym kroku zbadano korelacje sezonowe między stężeniem i depozycją aktywności wybranych izotopów. Jako sezony wybrano następujące okresy: zima (styczeń-marzec), wiosna (kwiecień-czerwiec), lato (lipiec-wrzesień) oraz jesień (październik-grudzień). Wyniki analiz przedstawiono w kolejnym paragrafie.

Korelacje sezonowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

Tabela 46. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - WIOSNA.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,00	0,33	0,60	-0,01	0,59
Be-7		1,00	0,20	0,13	0,21
Cs-137			1,00	0,07	0,76
Na-22				1,00	0,20
K-40					1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	0,00	0,11	0,00	0,98	0,00
Be-7		0,00	0,34	0,54	0,32
Cs-137			0,00	0,76	0,00
Na-22				0,00	0,35
K-40					0,00



Wykres 71. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137, a stężeniem aktywności K-40 z uwzględnieniem obserwacji odstającej (z lewej strony) i po jej odrzuceniu (z prawej strony) - WIOSNA.

Dla sezonu wiosennego (tabele 46,47) znaleziono korelacje między stężeniem aktywności Cs-137 i K-40, Cs-137 i Pb-210 oraz K-40 i Pb-210. Po wykonaniu wykresu 71 rozrzutu dla pary izotopów Cs-137 i K-40 zauważono punkt odstający o wyjątkowo wysokim stężeniu aktywności Cs-137. Pomiar ten dotyczył próbki zebranej w maju 2011 roku (a więc zawierającej prawdopodobnie ślady katastrofy w Fukuszymie). Po usunięciu tej obserwacji jeszcze raz wykonano wykres rozrzutu (wykres 71) oraz policzono korelację Spearmana (tabela 47). Z analizy obu wykresów oraz obu wyników korelacji Spearmana, można zauważyć, że po usunięciu ze zbioru danych obserwacji odległej, znacząco wzrósł współczynnik Pearsona (o 28%), natomiast współczynnik Spearmana prawie się nie zmienił (wzrósł o 2%). Wynika to z faktu, że korelacja rang Spearmana jest dużo bardziej odporna na występowanie punktów odstających.

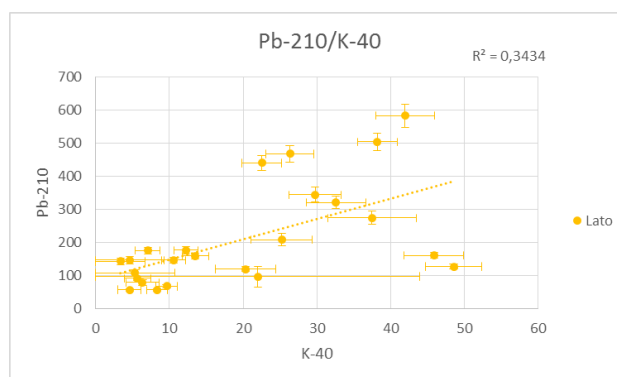
Tabela 47. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego bez 05.2011 - WIOSNA.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40	p	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,00	0,38	0,56	0,09	0,58	Pb-210	0,00	0,08	0,01	0,69	0,00
Be-7		1,00	0,26	0,09	0,23	Be-7		0,00	0,23	0,67	0,28
Cs-137			1,00	0,20	0,77	Cs-137			0,00	0,36	0,00
Na-22				1,00	0,25	Na-22				0,00	0,25
K-40					1,00	K-40					0,00

Tabela 48. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - LATO.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40	p	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,000	0,343	0,371	-0,177	0,648	Pb-210	0,00	0,10	0,07	0,41	0,00
Be-7		1,000	0,205	0,013	0,101	Be-7		0,00	0,33	0,95	0,64
Cs-137			1,000	0,095	0,585	Cs-137			0,00	0,66	0,00
Na-22				1,000	0,078	Na-22				0,00	0,72
K-40					1,000	K-40					0,00

W sezonie letnim (tabela 48) znaleziono korelację pomiędzy stężeniem aktywności Pb-210 i K-40 oraz pomiędzy Cs-137 i K-40 (wykres 72).



Wykres 72. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pb-210, a stężeniem aktywności K-40 - LATO.

Tabela 49. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - JESIEŃ.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	1,00	0,21	0,49	0,30
Be-7		1,00	0,30	0,05
Cs-137			1,00	0,39
K-40				1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	0,00	0,32	0,01	0,15
Be-7		0,00	0,15	0,81
Cs-137			0,00	0,06
K-40				0,00

Tabela 50. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - ZIMA.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	1,00	0,49	0,31	0,02
Be-7		1,00	-0,12	0,16
Cs-137			1,00	0,11
K-40				1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	0,00	0,02	0,15	0,91
Be-7		0,00	0,59	0,48
Cs-137			0,00	0,63
K-40				0,00

W sezonie jesiennym i zimowym (tabele 49,50) nie zaobserwowano żadnych wysokich korelacji między stężeniem aktywności poszczególnych izotopów. Korelacje o średniej sile wystąpiły jedynie dla pary izotopów Cs-137 i Pb-210 (jesień) oraz Pb-210 i Be-7 (zima). W analizie korelacji rang Spearmana w sezonie jesiennym i zimowym pominięto wyniki pomiarowe dla izotopu Na-22, z uwagi na bardzo dużą liczbę wyników będących poniżej limitu detekcji (w sezonie jesiennym 83%, w sezonie zimowym 70%).

Korelacje sezonowe depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

Tabela 51. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - WIOSNA.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,00	0,55	0,36	0,34	0,41
Be-7		1,00	0,49	0,86	0,38
Cs-137			1,00	0,30	0,70
Na-22				1,00	0,34
K-40					1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	0,00	0,00	0,04	0,05	0,02
Be-7		0,00	0,00	0,00	0,03
Cs-137			0,00	0,09	0,00
Na-22				0,00	0,05
K-40					0,00



Wykres 73. Wykres zależności między depozycją aktywności Cs-137, a stężeniem aktywności K-40 z uwzględnieniem obserwacji odstającej (z lewej strony) i po jej odrzuceniu (z prawej strony) - WIOSNA.

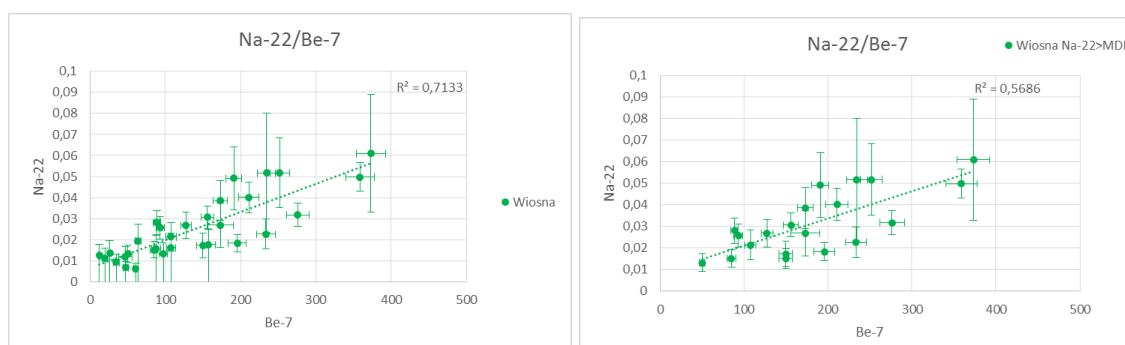
W sezonie wiosennym (tabele 51,52) zaobserwowano korelacje pomiędzy depozycją aktywności następujących par izotopów: Be-7 i Pb-210, Pb-210 i K-40, Be-7 i Cs-137, Be-7 i Na-22 oraz Cs-137 i K-40. Najwyższy współczynnik korelacji zanotowano dla pary Be-7 i Na-22 oraz Cs-137 i K-40. W przypadku pary Cs-137 i K-40 równie wysoką korelację zaobserwowano dla analizy sezonu wiosennego stężenia aktywności, natomiast w przypadku pary Be-7 i Na-22 istotna korelacja wystąpiła jedynie dla depozycji aktywności.

Tabela 52. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego bez 05.2011 - WIOSNA.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,00	0,57	0,32	0,40	0,38
Be-7		1,00	0,48	0,87	0,37
Cs-137			1,00	0,36	0,67
Na-22				1,00	0,38
K-40					1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	0,00	0,00	0,08	0,02	0,03
Be-7		0,00	0,01	0,00	0,04
Cs-137			0,00	0,05	0,00
Na-22				0,00	0,03
K-40					0,00

Z uwagi na dużą liczbę wyników poniżej limitu detekcji dla Na-22 (33%) sprawdzono jak zmieni się współczynnik korelacji pomiędzy Be-7 i Na-22 jeśli wyniki poniżej limitu detekcji nie zostaną uwzględnione w analizie. Po usunięciu 12 punktów współczynnik korelacji Spearmana wyniósł $R=0,74$ ($p=0,00$) (wykres 74).



Wykres 74. Wykres zależności między depozycją aktywności Na-22, a depozycją aktywności Be-7 z uwzględnieniem wyników poniżej limitu detekcji (z lewej strony) i po ich odrzuceniu (z prawej strony) - WIOSNA.

W sezonie letnim (tabela 53) najwyższą korelację zaobserwowano pomiędzy depozycją aktywności Pb-210 i Be-7. Dla żadnej pary izotopów współczynnik korelacji nie przekroczył jednak wartości 0,6.

Tabela 53. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - LATO.

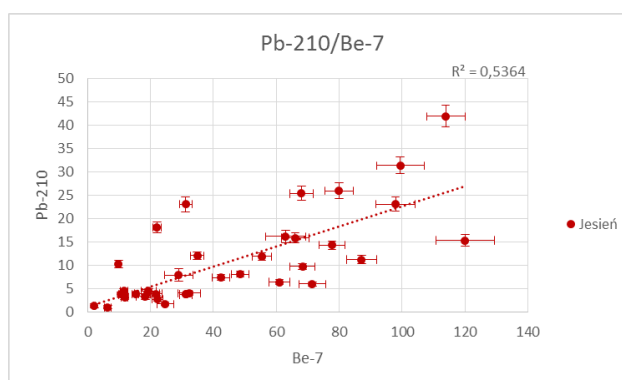
R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	1,00	0,55	0,32	0,02	0,54
Be-7		1,00	0,50	0,40	0,35
Cs-137			1,00	0,16	0,47
Na-22				1,00	0,02
K-40					1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pb-210	0,00	0,00	0,06	0,93	0,00
Be-7		0,00	0,00	0,02	0,04
Cs-137			0,00	0,37	0,01
Na-22				0,00	0,93
K-40					0,00

Tabela 54. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - JESIEŃ.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	1,00	0,73	0,50	0,39
Be-7		1,00	0,36	0,19
Cs-137			1,00	0,36
K-40				1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	0,00	0,00	0,00	0,02
Be-7		0,00	0,03	0,27
Cs-137			0,00	0,03
K-40				0,00



Wykres 75. Wykres zależności między depozycją aktywności Pb-210, a depozycją aktywności Be-7 - JESIEŃ .

W sezonie jesiennym (tabela 54) najwyższa korelacja również została zaobserwowana dla pary Pb-210 i Be-7, co zobrazowano na wykresie rozrzutu 75. Poza tym jedyna umiarkowana korelacja wystąpiła pomiędzy depozycją aktywności Pb-210 i Cs-137 .

Tabela 55. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - ZIMA.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	1,00	0,39	0,41	0,24
Be-7		1,00	0,38	0,49
Cs-137			1,00	0,22
K-40				1,00

p	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pb-210	0,00	0,02	0,02	0,18
Be-7		0,00	0,03	0,00
Cs-137			0,00	0,22
K-40				0,00

W sezonie zimowym (tabela 55) nie zanotowano żadnych współczynników korelacji przekraczających wartość 0,6. Korelacje o współczynniku $R \geq 0,4$ dotyczyły par Cs-137 i Pb-210 oraz Be-7 i K-40.

4.4. Analiza korelacji wzajemnych między izotopami gamma promieniotwórczymi w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych

Tak jak w przypadku próbek całkowitego opadu atmosferycznego, w celu zbadania wzajemnych zależności pomiędzy stężeniem i depozycją aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych zastosowano metodę korelacji rang Spearmana. W tabeli 56 przedstawiono wyniki analizy korelacji uwzględniającej wszystkie wyniki (bez podziału na sezony). Istotne współczynniki korelacji zanotowano jedynie dla par Cs-137 i K-40 oraz Pb-210 i K-40.

Tabela 56. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych.

R	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40	p	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40
Be-7	1,00	-0,05	0,27	0,12	0,16	Be-7	0,00	0,17	0,00	0,00	0,00
Cs-137		1,00	0,18	0,30	0,49	Cs-137		0,00	0,00	0,00	0,00
Na-22			1,00	0,07	0,22	Na-22			0,00	0,07	0,00
Pb-210				1,00	0,44	Pb-210				0,00	0,00
K-40					1,00	K-40					0,00

Następnym krokiem analizy korelacji było wyznaczenie sezonowych zależności pomiędzy stężeniem aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych. Wyniki tej analizy przedstawiono w kolejnych paragrafach (tabele 57-60).

Korelacje sezonowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych

Tabela 57. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - WIOSNA.

R	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40	p	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40
Be-7	1,00	0,38	0,34	0,32	0,36	Be-7	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Cs-137		1,00	0,17	0,15	0,40	Cs-137		0,00	0,04	0,07	0,00
Na-22			1,00	0,07	0,24	Na-22			0,00	0,42	0,00
Pb-210				1,00	0,39	Pb-210				0,00	0,00
K-40					1,00	K-40					0,00

Tabela 58. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - LATO.

R	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40	p	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40
Be-7	1,00	0,22	0,47	0,38	0,37	Be-7	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00
Cs-137		1,00	0,19	0,31	0,51	Cs-137		0,00	0,02	0,00	0,00
Na-22			1,00	0,07	0,21	Na-22			0,00	0,41	0,01
Pb-210				1,00	0,47	Pb-210				0,00	0,00
K-40					1,00	K-40					0,00

Tabela 59. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - JESIEŃ.

R	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40	p	Be-7	Cs-137	Na-22	Pb-210	K-40
Be-7	1,00	0,13	0,19	0,31	0,28	Be-7	0,00	0,10	0,02	0,00	0,00
Cs-137		1,00	0,36	0,33	0,56	Cs-137		0,00	0,00	0,00	0,00
Na-22			1,00	0,06	0,23	Na-22			0,00	0,44	0,00
Pb-210				1,00	0,51	Pb-210				0,00	0,00
K-40					1,00	K-40					0,00

Tabela 60. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - ZIMA.

R	Be-7	Cs-137	Pb-210	K-40	p	Be-7	Cs-137	Pb-210	K-40
Be-7	1,00	0,26	0,14	0,40	Be-7	0,00	0,00	0,08	0,00
Cs-137		1,00	0,42	0,44	Cs-137		0,00	0,00	0,00
Pb-210			1,00	0,30	Pb-210			0,00	0,00
K-40				1,00	K-40				0,00

Dla sezonu jesiennego i zimowego (tabele 59,60) pominięto analizę korelacji dla izotopu Na-22 z uwagi na bardzo dużą liczbę wyników poniżej limitu detekcji (odpowiednio 90% i 88%).

Nie zanotowano żadnych wysokich korelacji pomiędzy izotopami gamma promieniotwórczymi w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych. W związku z tym postanowiono zagregować wyniki pomiarowe do okresów miesięcznych i powtórzyć proces wyznaczania korelacji. Wyniki zamieszczono w punkcie 4.5 rozdziału II.

4.5. Analiza korelacji wzajemnych między izotopami gamma promieniotwórczymi w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych

Tabela 61 przedstawia całkowite korelacje stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych. Istotne zależności zostały zaobserwowane pomiędzy: Cs-137 i K-40, K-40 i Pb-210, K-40 i Be-7 oraz Be-7 i Na-22.

Tabela 61. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych .

R	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	p	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7
K-40	1,00	0,33	0,54	0,59	0,57	K-40	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Na-22		1,00	0,12	0,20	0,61	Na-22	0,00	0,00	0,14	0,02	0,00
Cs-137			1,00	0,31	0,21	Cs-137	0,00	0,14	0,00	0,00	0,01
Pb-210				1,00	0,36	Pb-210	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00
Be-7					1,00	Be-7	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00

Następnym etapem analizy było wyznaczenie korelacji sezonowych, których wyniki przedstawiono poniżej (tabele 62-65).

Korelacje sezonowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych

Tabela 62. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - WIOSNA.

R	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	p	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7
K-40	1,00	0,26	0,48	0,47	0,24	K-40	0,00	0,12	0,00	0,00	0,16
Na-22		1,00	0,15	0,01	0,54	Na-22		0,00	0,39	0,96	0,00
Cs-137			1,00	0,06	0,40	Cs-137			0,00	0,72	0,02
Pb-210				1,00	0,06	Pb-210				0,00	0,71
Be-7					1,00	Be-7					0,00

Tabela 63. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - LATO.

R	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	p	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7
K-40	1,00	0,13	0,56	0,32	0,34	K-40	0,00	0,46	0,00	0,06	0,05
Na-22		1,00	0,10	-0,15	0,50	Na-22		0,00	0,58	0,38	0,00
Cs-137			1,00	0,41	0,23	Cs-137			0,00	0,01	0,17
Pb-210				1,00	0,17	Pb-210				0,00	0,31
Be-7					1,00	Be-7					0,00

Tabela 64. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - JESIEŃ.

R	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7
K-40	1,00	0,52	0,54	0,37
Cs-137		1,00	0,28	0,21
Pb-210			1,00	0,40
Be-7				1,00

p	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7
K-40	0,00	0,00	0,00	0,03
Cs-137		0,00	0,10	0,21
Pb-210			0,00	0,02
Be-7				0,00

Tabela 65. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - ZIMA.

R	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7
K-40	1,00	0,55	0,28	0,45
Cs-137		1,00	0,41	0,39
Pb-210			1,00	0,01
Be-7				1,00

p	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7
K-40	0,00	0,00	0,10	0,01
Cs-137		0,00	0,01	0,02
Pb-210			0,00	0,96
Be-7				0,00

W wyniku analizy sezonowych korelacji rang Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych najwyższe korelacje zaobserwowano pomiędzy Cs-137 i K-40 oraz pomiędzy Be-7 i Na-22. W przypadku pary izotopów kosmogenicznych korelacje wystąpiły jedynie dla sezonu wiosennego i letniego, natomiast korelacje pomiędzy stężeniem aktywności Cs-137 i K-40 były istotne w każdym sezonie, przy czym największą siłę korelacji zanotowano dla sezonu letniego.

4.6. Analiza korelacji wzajemnych między izotopami plutonu i izotopami gamma promieniotwórczymi w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

Poniżej przedstawiono analizę korelacji pomiędzy stężeniem i depozycją aktywności Pu-239+240, a stężeniem i depozycją aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Analizy nie przeprowadzono dla Pu-238 z uwagi na bardzo dużą liczbę wyników poniżej limitu detekcji (po usunięciu obserwacji odległych związanych z kontaminacją laboratorium, liczba wyników <MDC wyniosła 86%).

Korelacje stężenia aktywności izotopów plutonu z izotopami gamma promieniotwórczymi w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

Tabela 66. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego .

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	1,00	0,38	0,13	0,46	0,10	0,36

P	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	0,00	0,00	0,26	0,00	0,40	0,00

Z tabeli 66 wynika, że nie ma silnych korelacji całkowitych pomiędzy stężeniem aktywności Pu-239+240, a stężeniem aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Najwyższą korelację zaobserwowano z Cs-137 (R=0,46).

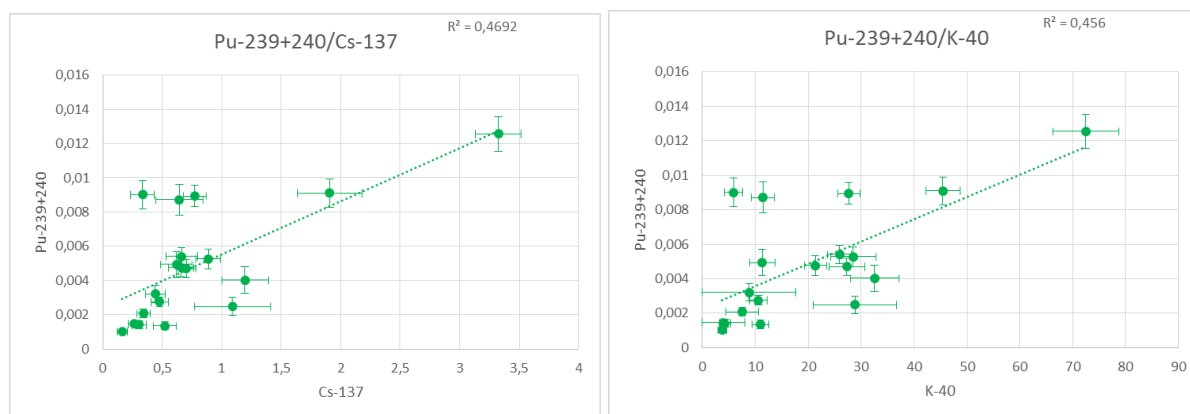
W następnym kroku zbadano zależności sezonowe pomiędzy stężeniem Pu-239+240 oraz izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Wyniki tej analizy przedstawiono w tabelach 67 – 70.

Tabela 67. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – WIOSNA.

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	1,00	0,45	0,09	0,66	0,16	0,73

p	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	0,00	0,04	0,69	0,00	0,49	0,00

W sezonie wiosennym Pu-239+240 najsilniej korelował z Cs-137, K-40 i Pb-210. Na wykresie 76. przedstawiono zależność stężenia aktywności Pu-239+240 od stężenia aktywności Cs-137 i K-40.



Wykres 76. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Cs-137 (po lewej) oraz Pu-239+240 i K-40 (po prawej) .

Dla pozostałych sezonów nie zaobserwowano żadnych silnych korelacji między stężeniem aktywności Pu-239+240, a stężeniem aktywności izotopów gamma promieniotwórczych.

Tabela 68. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – LATO.

R	Pu-239+240	Pu-238	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	1,00	0,35	0,39	0,27	0,20	0,00	0,27

p	Pu-239+240	Pu-238	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	0,00	0,12	0,08	0,23	0,37	0,99	0,24

Tabela 69. Korelacje Spearmana stężenia aktywności Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – JESIEŃ.

R	Pu-239+240	Pu-238	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	1,00	0,33	0,11	0,37	0,43	0,34

p	Pu-239+240	Pu-238	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	0,00	0,14	0,64	0,10	0,05	0,13

Tabela 70 . Korelacje Spearmana stężenia aktywności Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – ZIMA.

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	1,00	0,13	-0,11	0,14	0,04

p	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	0,00	0,59	0,64	0,53	0,87

Korelacje depozycji aktywności Pu-239+240 z izotopami gamma promieniotwórczymi w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

W wyniku analizy nie stwierdzono żadnych silnych korelacji między depozycją aktywności Pu-239+240, a depozycją izotopów gamma promieniotwórczych. Najwyższy współczynnik korelacji zanotowano dla pary Pu-239+240 i K-40 (R=0,53) w sezonie jesiennym (tabele 71-75).

Tabela 71. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	1,00	0,29	0,39	0,35	0,12	0,36

p	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	0,00	0,01	0,00	0,00	0,27	0,00

Tabela 72. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - WIOSNA.

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	1,00	0,13	0,16	0,39	0,06	0,43

p	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	0,00	0,59	0,48	0,08	0,78	0,05

Tabela 73. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - LATO.

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	1,00	0,22	0,28	0,29	-0,16	0,20

p	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40
Pu-239+240	0,00	0,35	0,22	0,20	0,48	0,38

Tabela 74. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopu Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - JESIEŃ.

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	1,00	0,35	0,43	0,50	0,53

P	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	0,00	0,12	0,05	0,02	0,01

Tabela 75. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopu Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - ZIMA.

R	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	1,00	0,20	0,02	-0,03	-0,12

P	Pu-239+240	Pb-210	Be-7	Cs-137	K-40
Pu-239+240	0,00	0,39	0,92	0,90	0,60

4.7. Analiza korelacji wzajemnych między izotopami plutonu i izotopami gamma promieniotwórczymi w próbkach aerozoli atmosferycznych

Kolejnym etapem analiz było sprawdzenie korelacji między stężeniem izotopów plutonu, a stężeniem izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych. W sezonie jesiennym i zimowym dla Pu-238 nie wykonano analizy korelacji z uwagi na bardzo dużą liczbę wyników poniżej limitu detekcji (odpowiednio 90% i 86% wyników) (tabele 76-80).

Korelacje stężenia aktywności izotopów plutonu z izotopami gamma promieniotwórczymi w próbkach aerozoli atmosferycznych

Tabela 76. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych.

R	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Pu-239+240	0,12	-0,06	-0,06	-0,05	0,58	1,00	0,33
Pu-238	0,26	0,36	0,19	-0,01	0,21	0,33	1,00

p	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Pu-239+240	0,26	0,56	0,59	0,66	0,00	0,00	0,00
Pu-238	0,02	0,00	0,09	0,91	0,05	0,00	0,00

W przypadku całkowitych korelacji stężenia aktywności, istotny współczynnik korelacji zaobserwowano jedynie dla pary izotopów Pu-239+240 i Be-7. Po podzieleniu okresu pomiarowego na sezony otrzymano więcej znaczących korelacji.

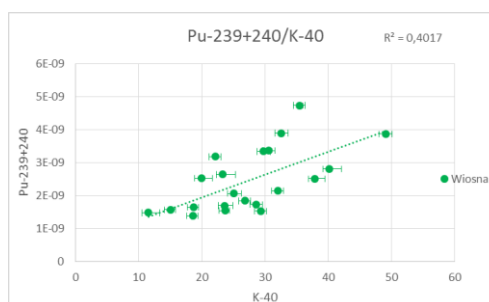
W sezonie wiosennym najsilniej korelowały ze sobą stężenia aktywności Pu-239+240 i Pu-238 oraz Pu-239+240 i K-40. W przypadku Pu-238 zaobserwowano jedną wartość odstającą (dla próbki zebranej w czerwcu 2012), co pokazano na wykresie rozrzutu 77.

W sezonie letnim najwyższy współczynnik korelacji zanotowano pomiędzy Pu-239+240 a Pb-210, natomiast w sezonie jesiennym i zimowym pomiędzy Pu-239+240 a Be-7.

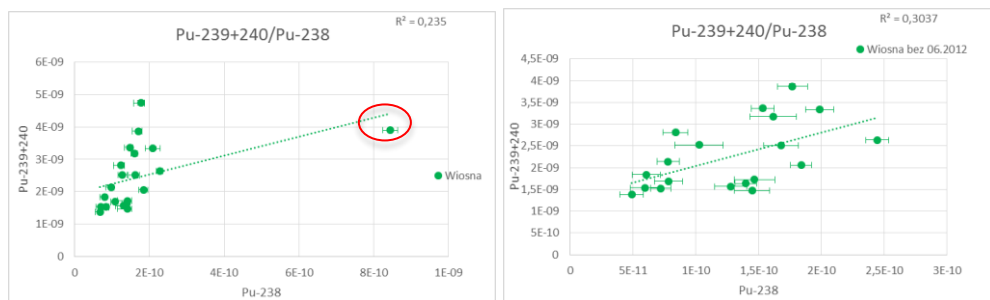
Tabela 77. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- WIOSNA.

R	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Pu-239+240	0,66	0,17	0,41	0,04	0,22	1,00	0,70
Pu-238	0,31	0,05	0,22	-0,20	-0,11	0,70	1,00

p	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Pu-239+240	0,00	0,47	0,07	0,88	0,34	0,00	0,00
Pu-238	0,18	0,84	0,35	0,37	0,64	0,00	0,00



Wykres 77. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i K-40 - WIOSNA.

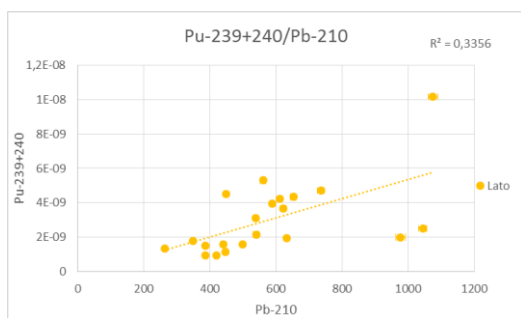


Wykres 78. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Pu-238 z uwzględnieniem wszystkich obserwacji (po lewej) i po odrzuceniu obserwacji odstającej (po prawej) – WIOSNA.

Tabela 78. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- LATO.

R	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Pu-239+240	0,36	-0,09	0,45	0,70	0,24	1,00	0,29
Pu-238	0,42	0,43	0,14	0,05	0,14	0,29	1,00

p	K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Pu-239+240	0,11	0,69	0,04	0,00	0,28	0,00	0,20
Pu-238	0,06	0,05	0,53	0,81	0,55	0,20	0,00



Wykres 79. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Pb-210 - LATO.

Tabela 79. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- JESIEŃ.

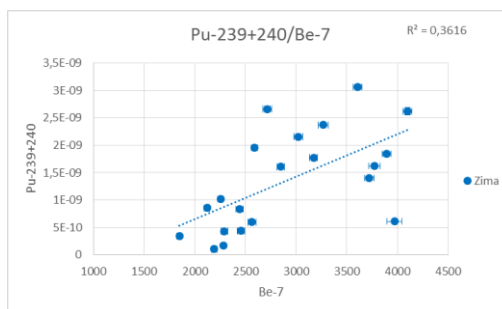
R	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240
Pu-239+240	0,00	-0,11	0,43	0,49	1,00

p	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240
Pu-239+240	1,00	0,63	0,05	0,03	0,00

Tabela 80. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- ZIMA.

R	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240
Pu-239+240	0,27	0,26	-0,09	0,65	1,00

P	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240
Pu-239+240	0,24	0,26	0,71	0,00	0,00



Wykres 80. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Be-7 – ZIMA.

4.8. Analiza korelacji między izotopami gamma promieniotwórczymi w tygodniowych i miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych, a stężeniem pyłu zawieszonego w powietrzu

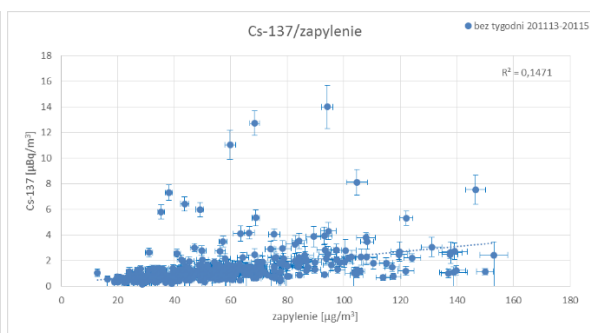
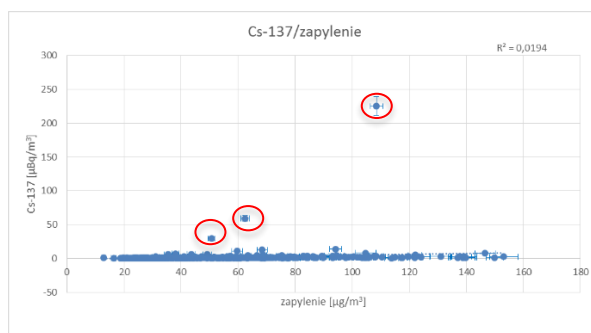
Jednym z zadań realizowanych w ramach rozprawy było zbadanie zależności stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych od stężenia pyłu zawieszonego w powietrzu. Stężenie pyłu zawieszonego w powietrzu (zwane dalej zapyleniem powietrza) wyznacza się, jako iloraz masy pyłu zgromadzonego na filtrze i objętości powietrza, które przepłynęło przez filtr podczas tygodniowej ekspozycji. Zapylenie powietrza zwykle podaje się $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$. Analizę korelacji Spearmana wykonano dla próbek zbieranych w okresach tygodniowych oraz dla próbek zagregowanych do okresów miesięcznych. W tabeli 80 przedstawiono uzyskane współczynniki korelacji wraz z poziomem istotności. Znaczące korelacje z zapyleniem powietrza zaobserwowano dla stężenia aktywności izotopów Cs-137 i K-40, przy czym zagregowanie próbek do okresów miesięcznych podniosło nieznacznie współczynnik korelacji.

Z uwagi na znaczącą ilość wyników pomiarowych K-40 będących poniżej limitu detekcji (25%), wykonano dodatkową analizę korelacji uwzględniając tylko wyniki o wartości powyżej limitu detekcji. Po odrzuceniu obserwacji poniżej limitu detekcji uzyskano znacznie wyższy współczynnik korelacji ($R=0,77$).

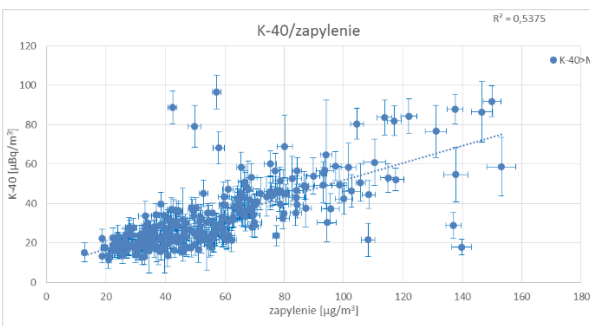
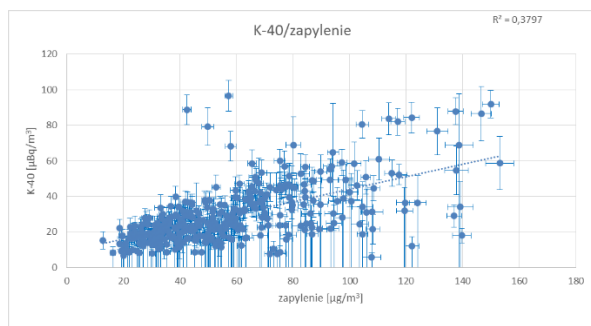
Na wykresach 81 i 82 przedstawiono zależność stężenia aktywności Cs-137 i K-40 od zapylenia powietrza. Na wykresie 81 widać trzy punkty odstające. Wszystkie związane są z wysokim stężeniem aktywności Cs-137 zmierzonym po awarii elektrowni jądrowej w Fukusimie.

Tabela 81. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych z zapyleniem w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych (po lewej) i w próbkach miesięcznych (po prawej).

Stężenie aktywności [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	Zapylenie [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]		Stężenie aktywności [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	Zapylenie [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	
	R	p		R	p
Be-7	-0,07	0,19	Be-7	-0,28	0,01
Cs-137	0,63	0,00	Cs-137	0,65	0,00
Na-22	0,40	0,00	Na-22	0,50	0,00
Pb-210	0,31	0,00	Pb-210	0,27	0,00
K-40	0,62	0,00	K-40	0,66	0,00
K-40>MDC	0,77	0,00	Pu-238+240	0,01	0,9
			Pu-238	0,39	0,00



Wykres 81. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137 a zapyleniem z uwzględnieniem wszystkich punktów (po lewej) i po odrzuceniu obserwacji odległych (po prawej).



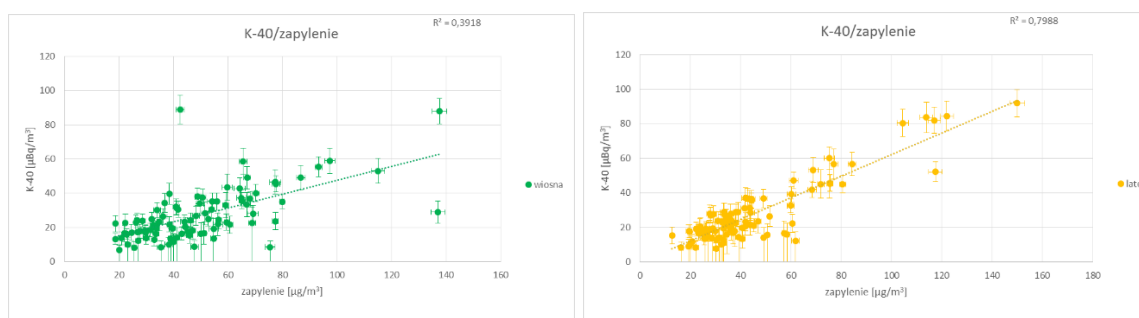
Wykres 82. Wykres zależności między stężeniem aktywności K-40 a zapyleniem z uwzględnieniem wszystkich punktów (po lewej) i po odrzuceniu wyników K-40 poniżej MDC (po prawej).

Kolejnym krokiem analizy było sprawdzenie występowania korelacji sezonowych, które zbadano już tylko dla próbek mierzonych w okresach tygodniowych. Również z tej analizy wynika, że największa zależność pomiędzy zapyleniem powietrza, a stężeniem aktywności zachodzi dla Cs-137 i K-40. W przypadku Cs-137 wyższe współczynniki korelacji zaobserwowano w sezonie jesiennym i zimowym, natomiast w przypadku K-40 w sezonie wiosennym i letnim. Tak jak w poprzednich analizach, w sezonie jesiennym i zimowym pominięto analizę korelacji zapylenia ze stężeniem aktywności Na-22 z uwagi na znaczącą liczbę wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji.

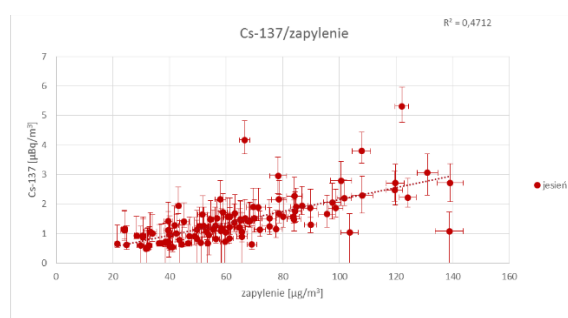
Tabela 82. Sezonowe korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych z zapyleniem w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych.

Stężenie aktywności [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	Wiosna		Lato		Jesień		Zima	
	R	p	R	p	R	p	R	p
Be-7	0,33	0,00	0,33	0,00	0,11	0,27	0,27	0,01
Cs-137	0,52	0,00	0,39	0,00	0,74	0,00	0,64	0,00
Na-22	0,31	0,00	0,33	0,00	-	-	-	-
Pb-210	0,20	0,06	0,30	0,00	0,29	0,00	0,38	0,00
K-40	0,62	0,00	0,69	0,00	0,56	0,00	0,49	0,00

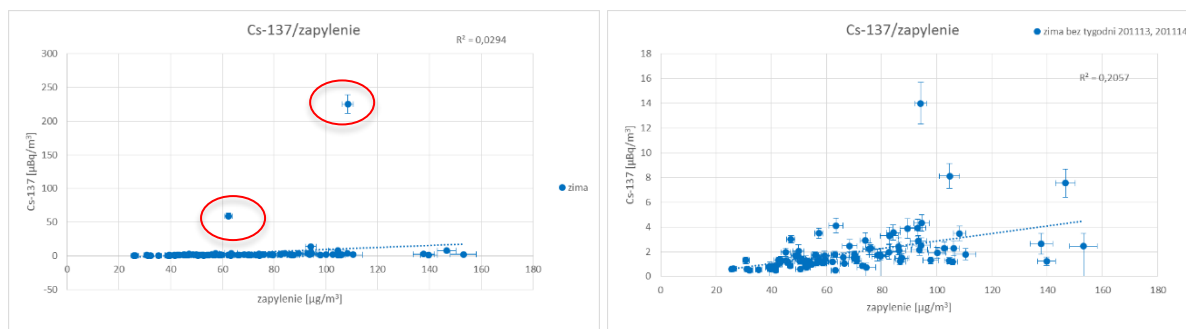
Poniżej przedstawiono wykresy 83-85 zależności stężenia aktywności K-40 i Cs-137 od zapylenia powietrza w sezonach, dla których zaobserwowano największą korelację. Na wykresie 85 widoczne są dwa punkty odstające, ze względu na wysokie stężenie aktywności Cs-137. Są to obserwacje zanotowane po awarii elektrowni jądrowej w Fukusimie.



Wykres 83. Wykres zależności między stężeniem aktywności K-40 a zapyleniem - WIOSNA (po lewej) i LATO (po prawej).



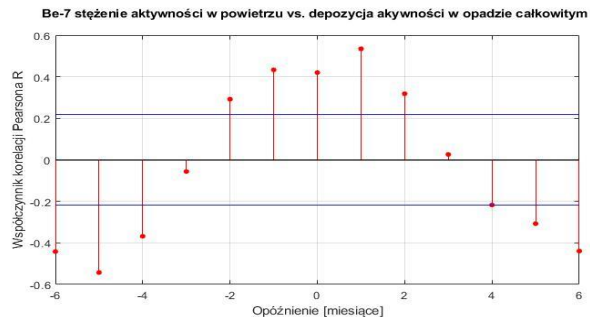
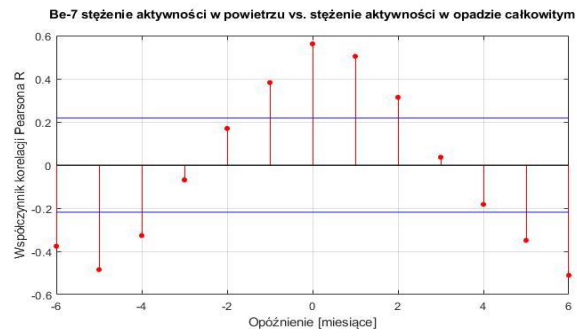
Wykres 84. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137 a zapyleniem - JESIEŃ.



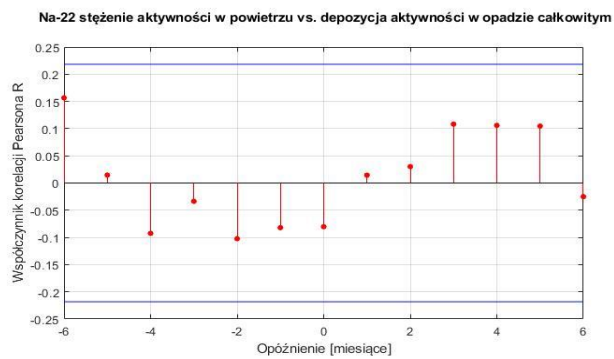
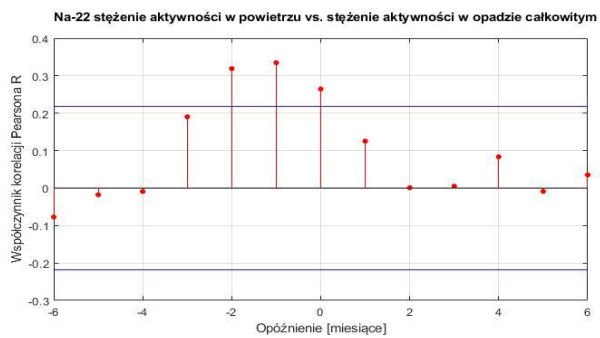
Wykres 85. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137 a zapyleniem z uwzględnieniem wszystkich punktów (po lewej) i po odrzuceniu obserwacji odległych (po prawej) – ZIMA.

4.9. Analiza korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności izotopów alfa i gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych i w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

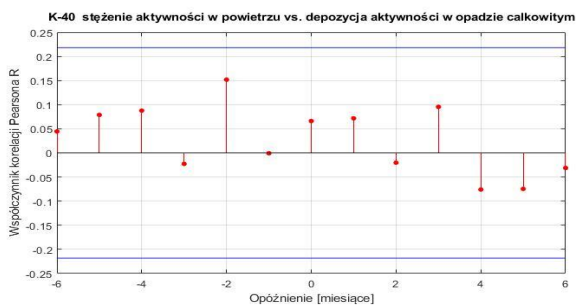
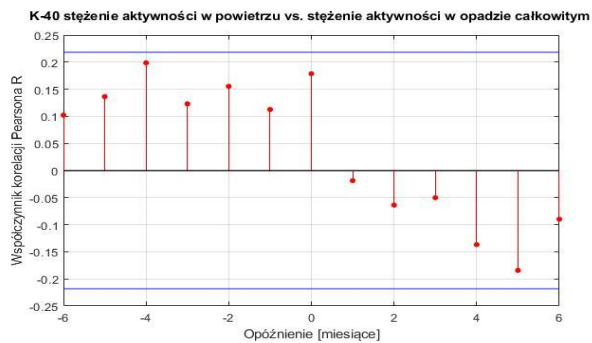
W celu sprawdzenia zależności pomiędzy stężeniem aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w przygruntowej warstwie powietrza, a stężeniem i depozycją aktywności izotopów w całkowitym opadzie atmosferycznym wykonano analizę korelacji krzyżowych. Szeregi czasowe przygotowano dla okresu od 01.2010 do 12.2016, a jako okres próbkowania (Δt) ustalono jeden miesiąc. Wyniki analizy zaprezentowano na wykresach 86-93. Na osi X wykresów zaznaczono przesunięcie czasowe między szeregiem stężenia aktywności danego izotopu w powietrzu, a stężeniem/depozycją aktywności tego izotopu w całkowitym opadzie atmosferycznym. Na osi Y zaznaczono z kolei wartość współczynnika korelacji Pearsona. Poziome, niebieskie linie oznaczają granicę, poniżej której współczynniki korelacji są nieistotne statystycznie. Z uwagi na bardzo wysokie aktywności Cs-137 zarejestrowane po awarii EJ w Fukuszymie, zdecydowano o przeprowadzeniu analizy korelacji dla okresu 2012-2016. W przypadku Pu-239+240, z uwagi na kontaminację laboratorium na przełomie 2013/2014 roku, analizę korelacji wykonano dla dwóch okresów: 2010.01-07-2013 oraz 06.2014-2016. Z uwagi na znaczącą liczbę wyników poniżej limitu detekcji dla Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego, dla tego izotopu nie przeprowadzono analizy korelacji krzyżowych.



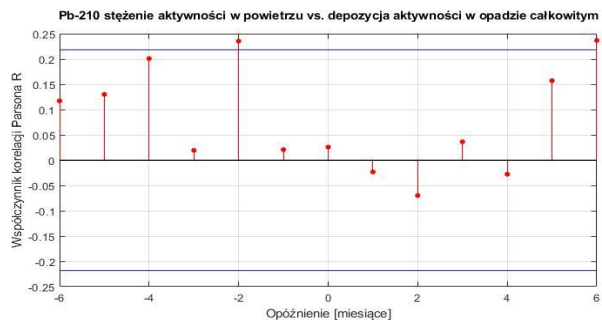
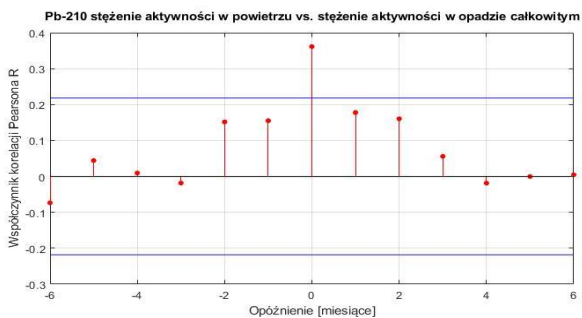
Wykres 86. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Be-7 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.



Wykres 87. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Na-22 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.

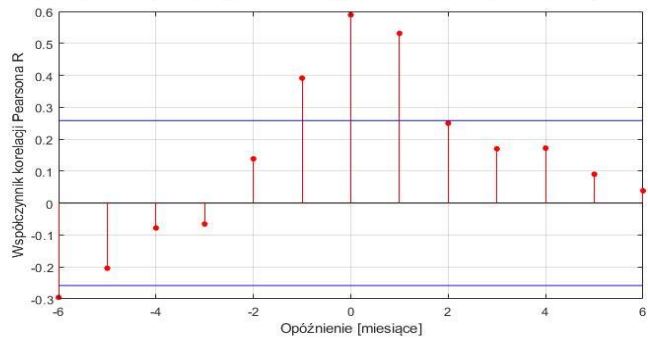


Wykres 88. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności K-40 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.

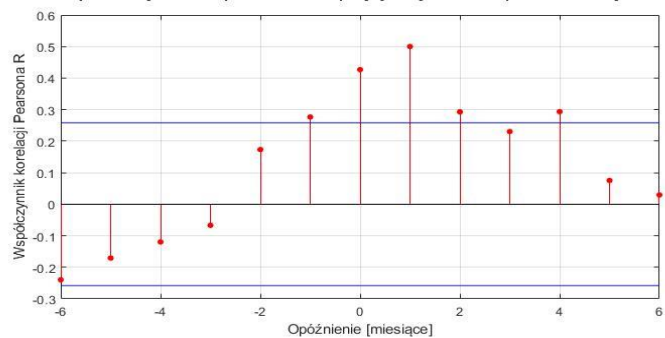


Wykres 89. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pb-210 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.

Cs-137 stężenie aktywności w powietrzu vs. stężenie aktywności w opadzie całkowitym 2012-2016

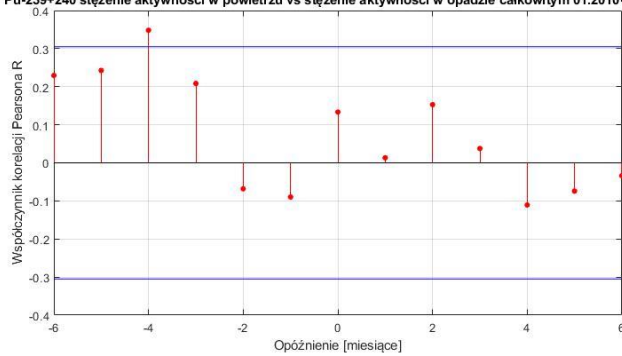


Cs-137 stężenie aktywności w powietrzu vs. depozycja aktywności w opadzie całkowitym 2012-2016

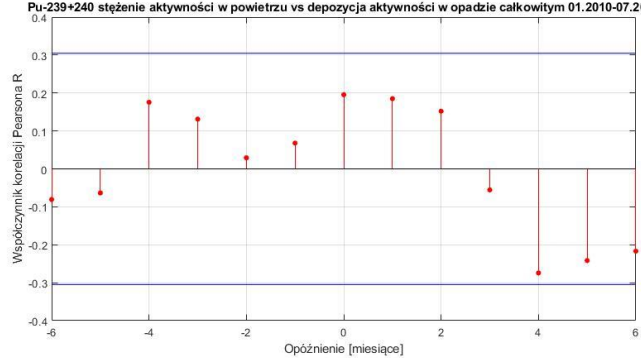


Wykres 90. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Cs-137 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym w okresie 2012-2016.

Pu-239+240 stężenie aktywności w powietrzu vs stężenie aktywności w opadzie całkowitym 01.2010-07.2013

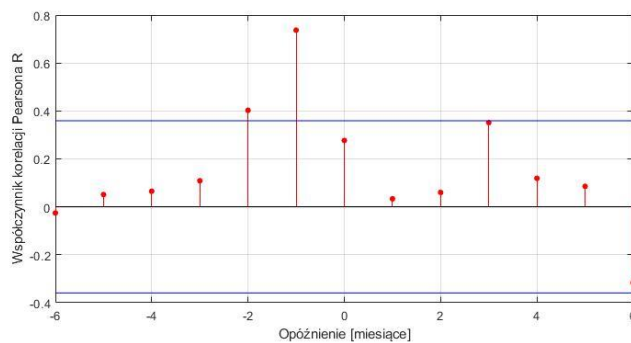


Pu-239+240 stężenie aktywności w powietrzu vs depozycja aktywności w opadzie całkowitym 01.2010-07.2013

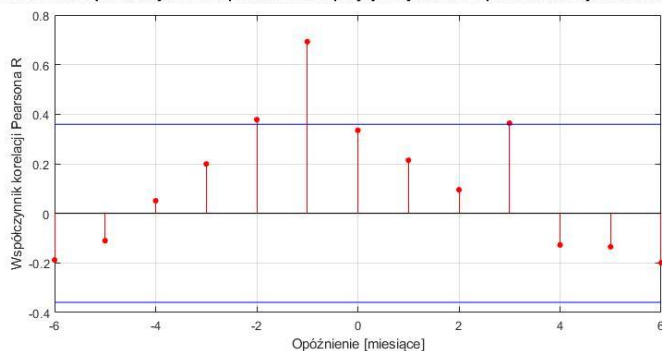


Wykres 91. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym dla okresu 01.2010-07.2013.

Pu-239+240 stężenie aktywności w powietrzu vs. stężenie aktywności w opadzie całkowitym 06.2014-12.2016

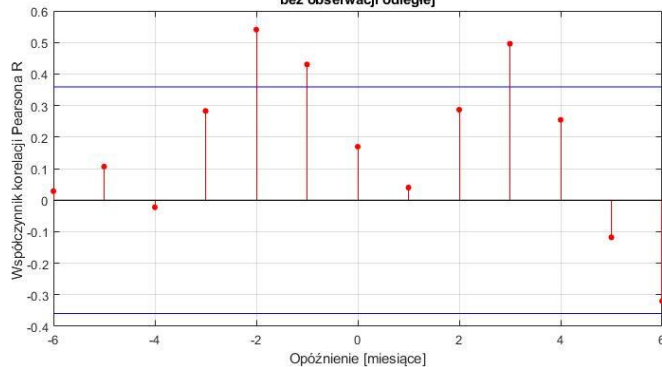


Pu-239+240 stężenie aktywności w powietrzu vs. depozycja aktywności w opadzie całkowitym 06.2014-12.2016

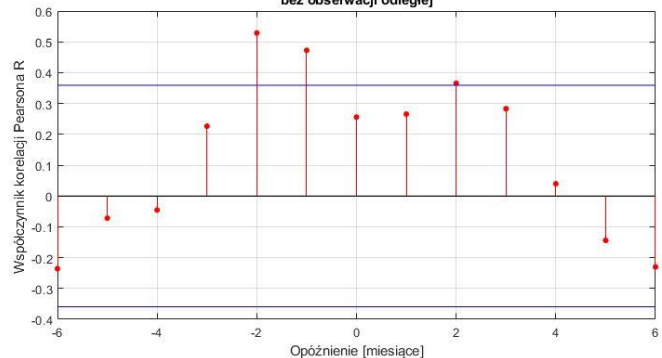


Wykres 92. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym dla okresu 06.2014-12.2016.

Pu-239+240 stężenie aktywności w powietrzu vs. stężenie aktywności w opadzie całkowitym 06.2014-2.2016 bez obserwacji odległej



Pu-239+240 stężenie aktywności w powietrzu vs. depozycja aktywności w opadzie całkowitym 06.2014-2.2016 bez obserwacji odległej



Wykres 93. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym dla okresu 06.2014-12.2016 bez obserwacji odległej.

Z analizy powyższych wykresów wynika, że znaczące zależności ($R > 0,4$) pomiędzy stężeniem aktywności izotopów promieniotwórczych w powietrzu i stężeniem oraz depozycją aktywności w całkowitym opadzie atmosferycznym występują dla Be-7, Cs-137 i Pu-239+240. Dla izotopów Be-7 i Cs-137 najwyższy współczynnik korelacji zaobserwowano dla $\Delta t = 0$ i $\Delta t = +1$, co sugeruje, że zawartość izotopu w całkowitym opadzie atmosferycznym w danym miesiącu zależy od zawartości tego izotopu w przygruntowej warstwie powietrza zmierzonej w tym samym miesiącu oraz w miesiącu poprzednim.

W przypadku izotopu Pu-239+240, w związku z wystąpieniem w okresie pomiarowym 06.2014-12.2016 jednej obserwacji odległej (próbka aerozoli atmosferycznych z sierpnia 2015), zdecydowano o przeprowadzeniu analizy korelacji opóźnionych z uwzględnieniem wszystkich obserwacji (wykres 92) oraz po odrzuceniu obserwacji odstającej (wykres 93). Z analizy wykresów wynika, że obserwacja odległa miała znaczący wpływ na strukturę korelogramów (odrzucenie spowodowało pojawienie się większej liczby opóźnień o istotnych statystycznie współczynnikach korelacji). Dodatkowo, w okresie 06.2014-12.2016 zaobserwowano występowanie znaczących ($R > 0,4$) korelacji dla opóźnień ujemnych, sugerujących rejestrację podwyższonego poziomu Pu-239+240 najpierw w całkowitym opadzie atmosferycznym, a dopiero później w przygruntowej warstwie powietrza. Tego typu zjawisko może być związane z procesem wymycia wraz z opadami izotopów plutonu z górnych warstw atmosfery i szybszym niż depozycja sucha, transportem na powierzchnię Ziemi. Opóźniona rejestracja obecności plutonu w przygruntowej warstwie powietrza może również wynikać z procesu resuspensji aerozoli plutonu, przetransportowanych na powierzchnię Ziemi przez opady atmosferyczne.

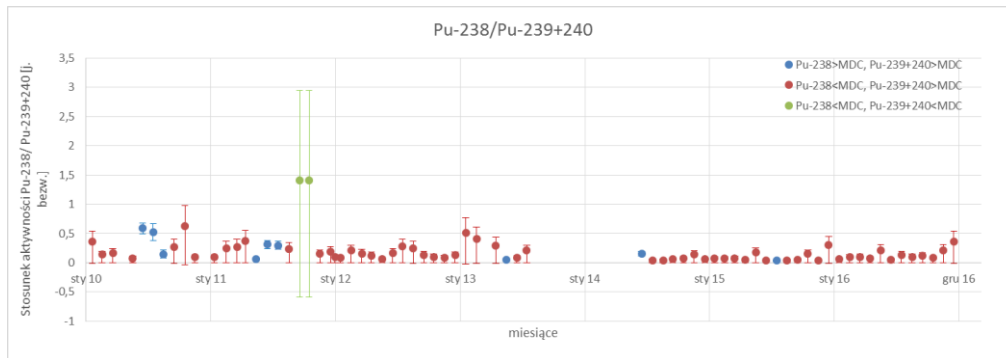
4.10. Badanie źródeł izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych oraz w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

Celem tej części pracy było zbadanie źródeł pochodzenia izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych oraz w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego na podstawie wartości stosunków izotopowych omówionych w punkcie 6.1 rozdziału I. Dla obu rodzaju próbek wykonano po 6 wykresów prezentujących zmienność stosunków izotopowych w czasie z uwzględnieniem wszystkich obserwacji oraz tylko obserwacji będących powyżej limitu detekcji.

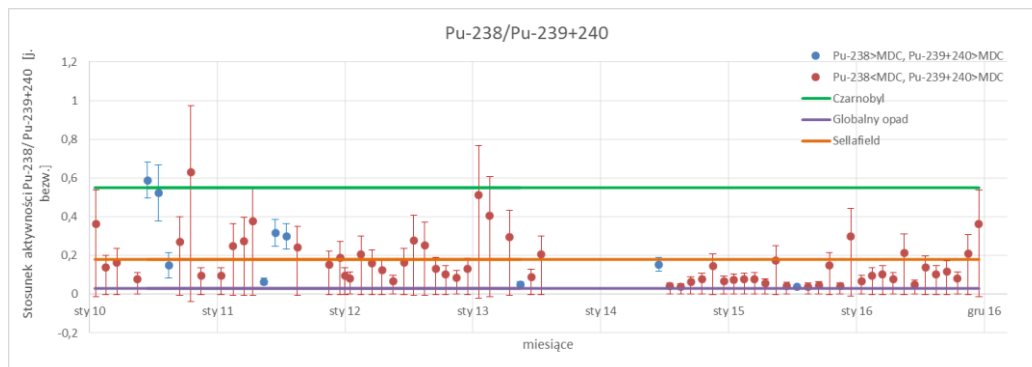
Analiza źródeł skażenia izotopami plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego

Z analizy wykresów 94-96 przedstawiających zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 wynika, że dla większości próbek źródło pochodzenia izotopów plutonu jest mieszane. Najwyższym stosunkiem świadczącym o pochodzeniu z wypalonego paliwa jądrowego (w szczególności np. z miejsc o wysokim opadzie czarnobylskim) charakteryzują się próbki z czerwca ($0,59 \pm 0,09$) i lipca ($0,52 \pm 0,14$) 2010, natomiast najniższy stosunek został zaobserwowany dla próbki zebranej w lipcu 2015 ($0,037 \pm 0,019$). Uwzględniając niepewności pomiarowe, w każdej badanej próbce stosunek aktywności izotopów plutonu był wyższy bądź

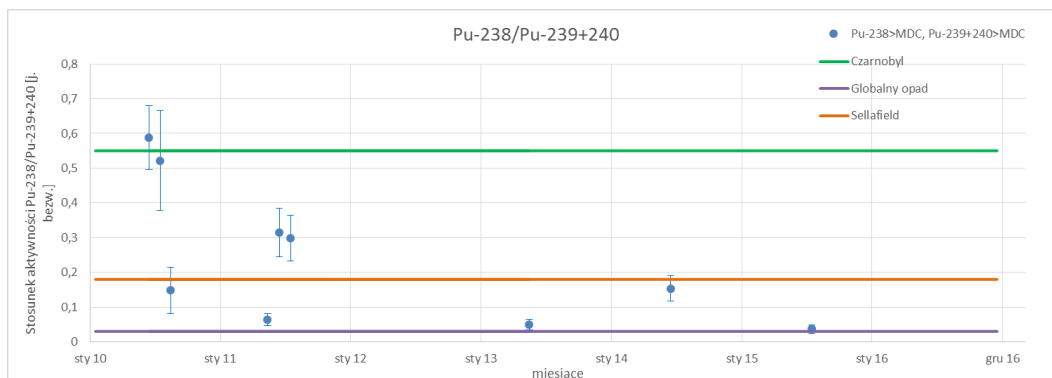
równy wartości charakterystycznej dla opadu globalnego. Również stosunki aktywności Cs-137/Pu-239+240 (wykresy 97-99) świadczą o mieszanym pochodzeniu izotopów plutonu. Wartość stosunku charakterystyczną dla awarii EJ w Czarnobylu przedstawia jedynie próbka zebrana w lutym 2013 roku (1643 ± 516). Z kolei najniższą wartość stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 zaobserwowano dla próbki zebranej w czerwcu 2014 (37 ± 11). Wynik ten, uwzględniając niepewność pomiarową, świadczy o pochodzeniu plutonu z globalnego opadu atmosferycznego.



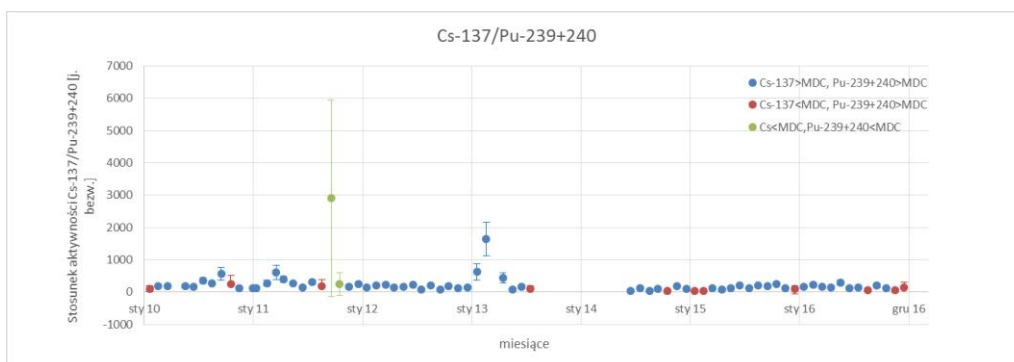
Wykres 94. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.



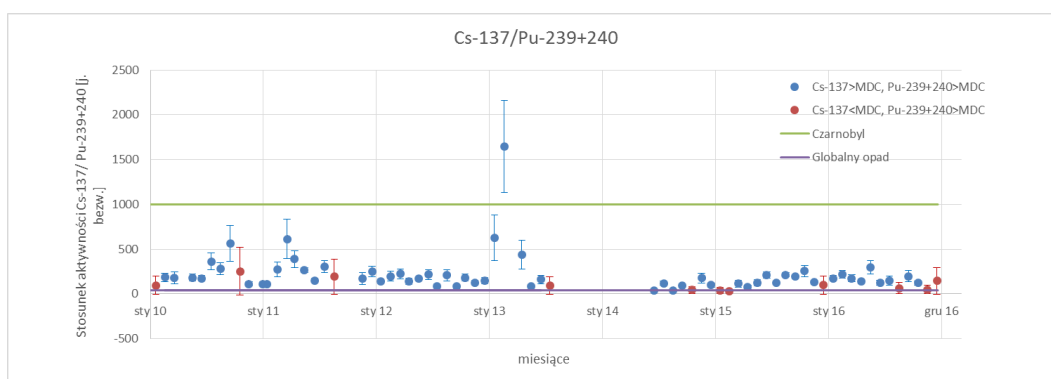
Wykres 95. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-238 i aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji.



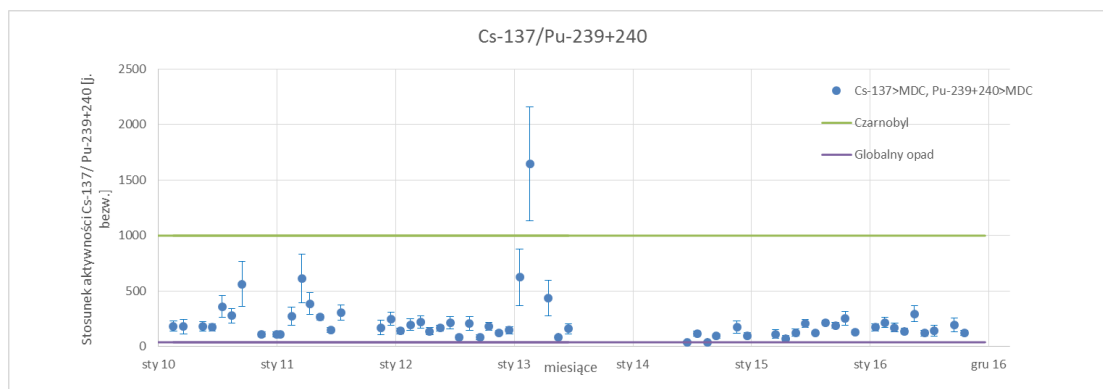
Wykres 96. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 lub Pu-238 była poniżej limitu detekcji.



Wykres 97. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.



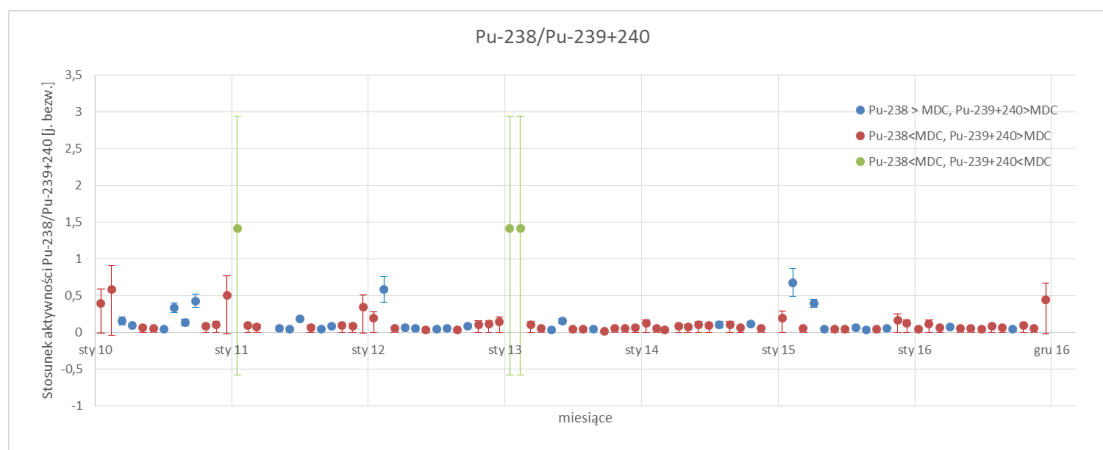
Wykres 98. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Cs-137 i aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji.



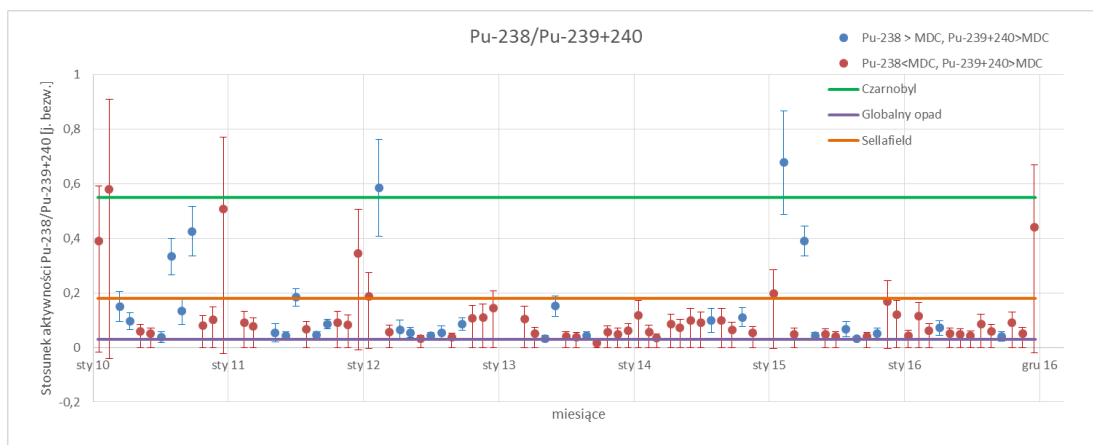
Wykres 99. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 lub Cs-137 była poniżej limitu detekcji.

Analiza źródeł skażenia izotopami plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych

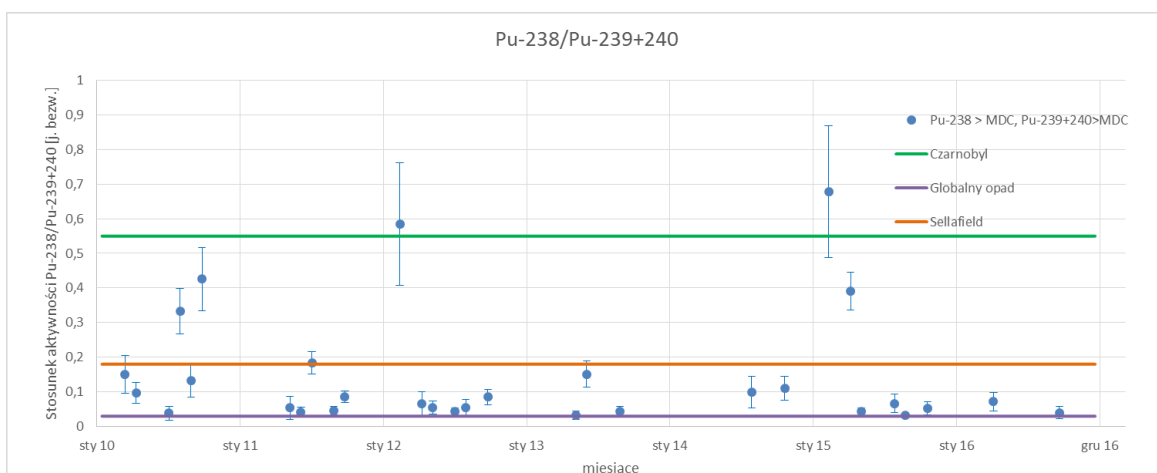
W celu wyznaczenia stosunków aktywności rozważanych izotopów najpierw zagregowano wyniki pomiarowe stężenia aktywności Cs-137 zawartego w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych do okresów, w jakich mierzone były izotopy plutonu. Następnie wyznaczono stosunki stężenia aktywności Pu-238/Pu-239+240 i Cs-137/Pu-239+240. Biorąc pod uwagę wartości niepewności pomiarowej można przyjąć, że ze względu na wartość stosunku Pu-238/Pu-239+240 jedynie dwie próbki charakteryzują się jednoznacznie stosunkiem odpowiadającym wypalonemu paliwu jądrowemu: luty 2012 ($0,59 \pm 0,18$) i luty 2015 ($0,68 \pm 0,19$). Pozostałe próbki wykazują mieszane pochodzenie, przy czym większy wkład niż wypalone paliwo jądrowe wydaje się mieć globalny opad promieniotwórczy. Narzucającą się interpretacją konkretnego źródła wypalonego paliwa jądrowego jest opad po katastrofie czarnobylskiej. Wykresy zmienności w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 również sugerują mieszane źródła izotopów plutonu obecnych w próbkach aerozoli atmosferycznych, jednak większa (niż w przypadku stosunku Pu-238/Pu-239+240) liczba próbek wskazuje na źródło „czarnobylskie”. Najwyższe wartości stosunku stężenia aktywności Cs-137/Pu-239+240 (>4000) zanotowano dla próbek zebranych w styczniu i lutym 2010, grudniu 2010 i grudniu 2016. W granicach niepewności pomiarowej, zarówno w przypadku stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 jak i Pu-238/Pu-239+240, dla wszystkich zbadanych próbek stosunek aktywności jest wyższy bądź równy wartości charakterystycznej dla globalnego opadu promieniotwórczego (wykresy 100-105).



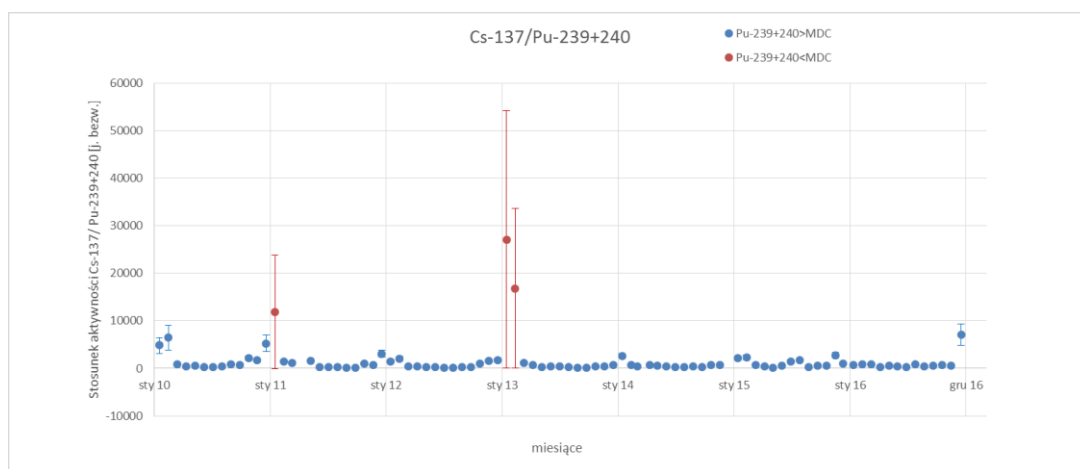
Wykres 100. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.



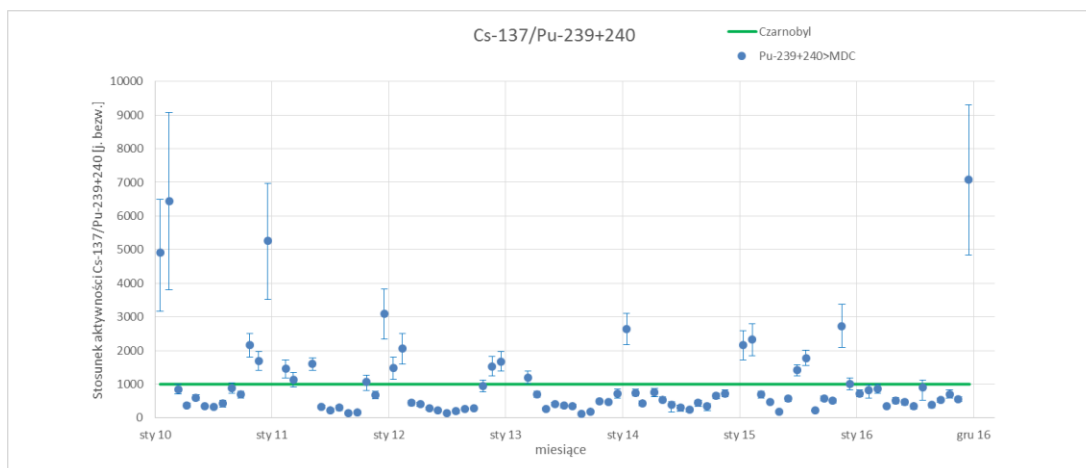
Wykres 101. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-238 i aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji.



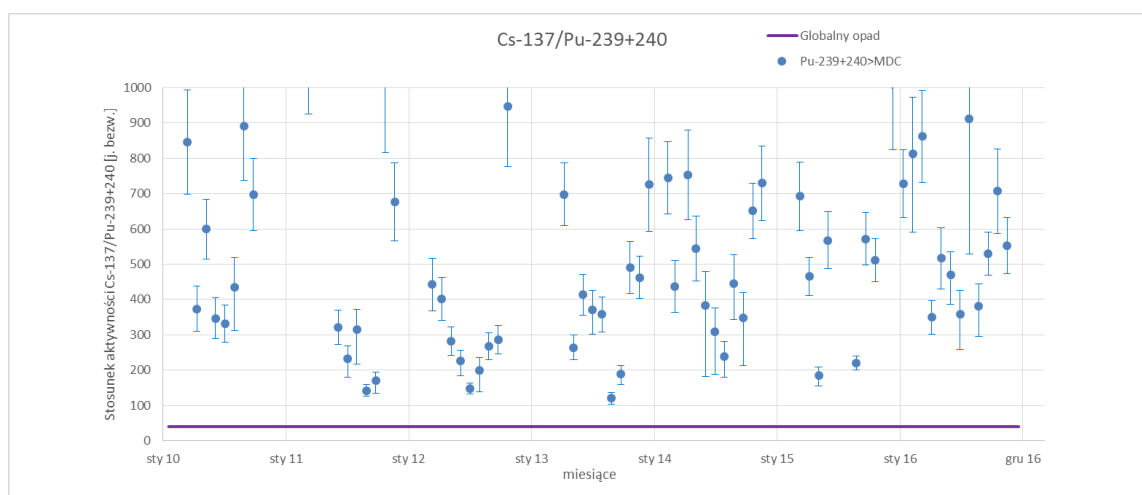
Wykres 102. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 lub Pu-238 była poniżej limitu detekcji.



Wykres 103. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.



Wykres 104. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji z zaznaczeniem wartości stosunku odpowiadającego awarii w Czarnobylu.



Wykres 105. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji z zaznaczeniem wartości stosunku odpowiadającego globalnemu opadowi promieniotwórczemu.

4.11. Analiza zależności stężenia oraz depozycji aktywności izotopów promieniotwórczych w badanych próbkach od wybranych wskaźników meteorologicznych

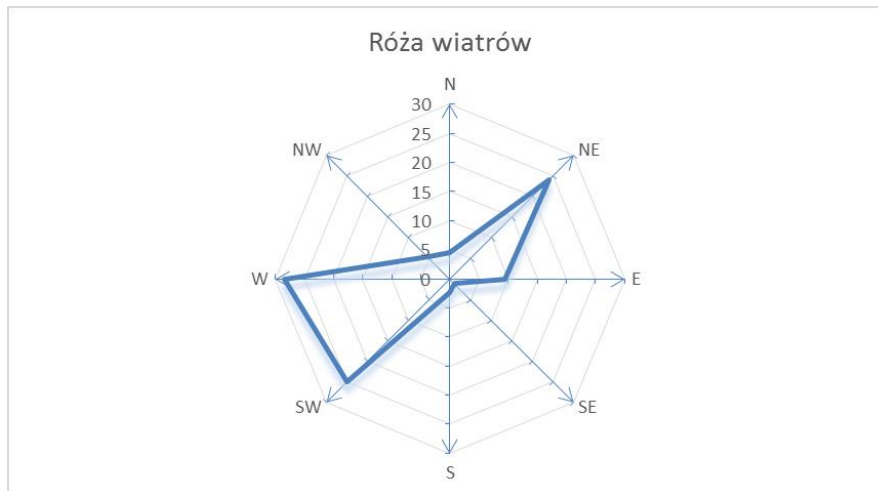
W celu sprawdzenia zależności dynamiki zmian stężenia i depozycji aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych zawartych w przyziemnej warstwie atmosfery oraz w całkowitym opadzie atmosferycznym od wskaźników meteorologicznych, wykonano model regresji wielokrotnej krokowej wstecznej oraz analizę korelacji wzajemnych. Analizy nie przeprowadzono dla $Pu-238$ w całkowitym opadzie atmosferycznym z uwagi na przeważającą liczbę wyników będących poniżej limitu detekcji. Dane meteorologiczne pochodziły z zasobów krakowskiego oddziału Instytutu Meteorologii i Gospodarki Wodnej i dotyczyły stacji pomiarowej

w Balicach. Model regresji wielokrotnej wykonano dla następujących wskaźników meteorologicznych: średnie zachmurzenie ogólne, temperatura termometru suchego, wilgotność względna, ciśnienie atmosferyczne na poziomie morza, suma opadu atmosferycznego, rodzaj opadu atmosferycznego oraz kierunek wiatru. Rozważono następujące rodzaje opadu atmosferycznego:

- opady ciekłe przynajmniej z jednego ze zjawisk: deszcz, mżawka
- opady śniegowe przynajmniej z jednego ze zjawisk: deszcz ze śniegiem, śnieg, krupa śnieżna, śnieg ziarnisty, pył diamentowy lub opady ciekłe + śniegowe w ciągu 6 godz.
- opady lodowe przynajmniej z jednego ze zjawisk: grad, ziarna lodowe, krupy lodowe
- opady śniegowe + lodowe lub opady ciekłe + śniegowe + lodowe

Opady śniegowe i lodowe zsumowano i rozpatrywano razem, natomiast kierunek wiatru podzielono na 8 kategorii zgodnie z różą wiatrów (W, E, N, S, NW, NE, SE, SW). Proces agregacji wskaźników meteorologicznych dla temperatury termometru suchego, wilgotności względnej, ciśnienia atmosferycznego oraz średniego zachmurzenia ogólnego polegał na wyznaczeniu średniej wartości odpowiednio dla okresu tygodniowego i miesięcznego. W przypadku opadu całkowitego, opadów ciekłych oraz opadów śniegowych i lodowych proces agregacji polegał na wyznaczeniu sumy, natomiast w przypadku siły wiatru na wyznaczeniu długości wypadkowego wektora prędkości dla każdego z 8 kierunków róży wiatrów.

Finalnie uzyskano 15 predyktorów (tj. średnie zachmurzenie ogólne, temperatura termometru suchego, wilgotność względna, ciśnienie atmosferyczne na poziomie morza, suma opadu atmosferycznego, suma opadów ciekłych, suma opadów śniegowych i lodowych, siła wiatru dla każdego z 8 kierunków), które uwzględniono w pierwszym kroku modelu regresji wielokrotnej. Następnie w zależności od istotności statystycznej poszczególnych predyktorów, istotności statystycznej całego modelu i wartości dopasowanego współczynnika R^2 , usuwano kolejne zmienne objaśniające, aż do momentu otrzymania modelu, w którym wszystkie zmienne objaśniające były istotne statystycznie. W tabelach 84-86 przedstawiono zestawienie predyktorów, które w wyniku modelowania zostały uznane za znaczące statycznie, tzn. takie, których wartości mają wpływ na dynamikę zmian stężenia i depozycji rozważanych izotopów w badanych próbkach. Szczegółowe wyniki regresji wielokrotnej dla poszczególnych izotopów zamieszczono w dodatku nr 1. Dodatkowo dla każdego izotopu wykonano analizę korelacji Pearsona z rozważanymi wskaźnikami meteorologicznymi. Wyniki istotne statystycznie zamieszczono w tabelach 87-89, natomiast komplet wszystkich wyników zamieszczono w dodatku nr 1. W celu wykonania bardziej kompleksowej analizy z uzyskanych danych meteorologicznych sporządzono dodatkowo różę wiatrów (wykres 106) oraz zestawienie średnich sezonowych wskaźników meteorologicznych (tabela 83). Szczegółową dyskusję wyników wykonanych analiz dla każdego izotopu przeprowadzono w rozdziale III.



Wykres 106. Róża wiatrów dla Krakowa [%].

Tabela 83. Średnie sezonowe wartości wielkości meteorologicznych dla Krakowa.

	Stopień zachmurzenia [j. bezw.]	Wilgotność względna [%]	Suma opadu całkowitego [mm]	Temp. term. suchego [°C]	Cisnienie atm. na p.m. [hPa]	Suma opadów ciekłych [mm]	Suma opadów śniegowych i lodowych ¹ [mm]	Wietrzność [m/s]
zima	6	83	115	0	1017	60	55	3,47
wiosna	5	72	209	14	1015	198	11	2,90
lato	4	76	230	17	1016	225	5	2,61
jesień	6	87	123	4	1019	92	32	2,92

¹W sezonie letnim np. grad

W przypadku aerozoli atmosferycznych największy współczynnik dopasowania modelu regresji wielokrotnej krokowej wstecznej ($R^2 = 0,48$) uzyskano dla zależności stężenia aktywności Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza od zachmurzenia ogólnego, temperatury powietrza, wilgotności względnej oraz siły wiatru wiejącego z kierunku SW i NW. Analiza korelacji wzajemnych również wskazała na zależność stężenia aktywności Be-7 od wilgotności względnej, zachmurzenia i temperatury, nie zanotowano jednak znaczącej korelacji z siłą wiatru. Drugim w kolejności modelem o najwyższym współczynniku dopasowania był model uzyskany dla Pu-239+240 ($R^2 = 0,36$), w którym statystycznie istotnymi zmiennymi objaśniającymi były wilgotność względna oraz zachmurzenie. Podobnie jak w przypadku Be-7 stężenie aktywności Pu-239+240 najbardziej korelowało z temperaturą powietrza, wilgotnością względną oraz zachmurzeniem. Dodatkowo zanotowano umiarkowaną ujemną korelację z opadami śniegowymi i lodowymi. Dla wszystkich rozważanych izotopów zaobserwowano ujemne korelacje z opadami atmosferycznymi (zarówno z opadem całkowitym jak i z opadami ciekłymi i stałymi), natomiast dla Be-7 i Pu-239+240 dodatkowo zanotowano podobny charakter zależności od temperatury (dodatnia umiarkowana korelacja), od wilgotności względnej oraz zachmurzenia (ujemne umiarkowane korelacje).

W przypadku całkowitego opadu atmosferycznego również najlepszy model zależności od warunków meteorologicznych znaleziono dla Be-7. Zarówno dla stężenia jak i depozycji aktywności Be-7 w całkowitym opadzie atmosferycznym współczynnik dopasowania modelu był najwyższy (odpowiednio $R^2 = 0,41$ i $R^2 = 0,73$).

W przypadku depozycji następnym pod względem najlepszego dopasowania był model dla drugiego izotopu kosmogenicznego Na-22 ($R^2 = 0,47$). Dla obu izotopów zmiennymi objaśniającymi były m.in. suma opadu całkowitego oraz temperatura powietrza. Analiza korelacji wzajemnych pokazała dodatkowo, że depozycja aktywności Be-7 i Na-22 koreluje z sumą opadów ciekłych, natomiast nie koreluje z sumą opadów stałych. Dla wszystkich izotopów oprócz K-40 suma opadów była istotną statystycznie zmienną objaśniającą, a współczynnik korelacji Pearsona był dodatni. Dla wszystkich izotopów dodatnie korelacje zaobserwowano również z temperaturą powietrza i siłą wiatru z kierunku N, natomiast ujemne korelacje zaobserwowano z wilgotnością względną i ciśnieniem atmosferycznym n.p.m..

W przypadku stężenia aktywności rozważanych izotopów w całkowitym opadzie atmosferycznym dodatnią korelację z sumą całkowitego opadu zaobserwowano jedynie dla Be-7, dla pozostałych izotopów korelacja ta była ujemna (zarówno dla sumy opadu całkowitego jak i sumy opadów ciekłych).

Tabela 84. Zmienne objaśniające dynamikę zmian stężenia aktywności wybranych radioizotopów zawartych w przygruntowej warstwie powietrza wraz z informacją o wartości współczynników ustandaryzowanych.

Izotop	R^2	P	Zmienne objaśniające
Be-7	0,49	0,00	zachmurzenie ogólne (-0,13), temperatura termometru suchego (0,25), wilgotność względna (-0,4), SW (-0,11), NW (-0,08)
Pb-210	0,30	0,00	wilgotność względna (0,1), ciśnienie na p.m.(0,2), NE (0,34), E (-0,18), W (-0,21), NW (-0,12)
K-40	0,09	0,00	zachmurzenie ogólne (-0,2), temperatura termometru suchego (-0,26), W (-0,16)
Cs-137	0,25	0,00	temperatura termometru suchego (-0,53), wilgotność względna (-0,27), ciśnienie na p.m. (0,1), E (0,21), SW (-0,11), NW (-0,53)
Na-22	-	-	Brak
Pu-239+240	0,36	0,00	zachmurzenie ogólne (-0,36), wilgotność względna (-0,3)
Pu-238	0,19	0,00	zachmurzenie ogólne (-0,42), temperatura termometru suchego (-0,38), NW (0,28)

Tabela 85. Zmienne objaśniające dynamikę zmian depozycji aktywności wybranych radioizotopów zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym wraz z informacją o wartości współczynników ustandaryzowanych.

Izotop	R^2	P	Zmienne objaśniające
Be-7	0,73	0,00	temperatura termometru suchego (0,33), suma opadu całkowitego (0,71), E (0,16), SE (-0,18), S (0,13)
Pb-210	0,08	0,00	suma opadu całkowitego (0,27)
K-40	0,16	0,00	temperatura termometru suchego (0,33), N (0,23), NE (0,24), SW (0,34)
Cs-137	0,17	0,00	wilgotność względna (-0,25), suma opadu całkowitego (0,33)
Na-22	0,47	0,00	temperatura termometru suchego (0,21), suma opadu całkowitego (0,47), N (0,19), NE (0,18), S (0,18)
Pu-239+240	-	-	Brak

Tabela 86. Zmienne objaśniające dynamikę zmian stężenia aktywności wybranych radioizotopów zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym wraz z informacją o wartości współczynników ustandaryzowanych.

Izotop	R ²	P	Zmienne objaśniające
Be-7	0,41	0,00	wilgotność względna (-0,51), suma opadu całkowitego (0,45), NW (-0,26)
Pb-210	0,12	0,00	temperatura termometru suchego (0,26), W (0,24)
K-40	0,15	0,00	ciśnienie na p.m. (0,29), NW (-0,23)
Cs-137	0,08	0,00	suma opadu całkowitego (-0,3)
Na-22	0,08	0,00	suma opadu całkowitego (0,27)
Pu-239+240	-	-	Brak

Tabela 87. Istotne statystycznie korelacje wzajemne stężenia aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych zawartych w przygruntowej warstwie powietrza i wybranych wskaźników meteorologicznych.

R	K-40	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Zachmurzenie ogólne	-0,11			-0,55	-0,56	
Temp. termometru suchego	-0,15	-0,36	-0,24	0,56	0,51	
Wilgotność względna			0,21	-0,63	-0,54	
Ciśnienie na p.m.	0,14	0,22	0,25			
Suma opadu całkowitego	-0,19	-0,21	-0,19			
Opady ciekłe	-0,20	-0,24	-0,19			
Opady śniegowe i lodowe				-0,22	-0,45	
N						
NE	0,17	0,28	0,42			
E		0,18		0,19		
SE		-0,08		0,23	0,33	
S		-0,15	-0,09	0,08		
SW		-0,15	-0,19	-0,25	-0,28	0,22
W	-0,19	-0,13	-0,35	-0,10		
NW	-0,15	-0,10	-0,23			

Tabela 88. Istotne statystycznie korelacje wzajemne depozycji aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym i wybranych wskaźników meteorologicznych.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40	Pu-239+240
Zachmurzenie ogólne						
Temp. termometru suchego		0,57	0,24	0,42	0,17	0,40
Wilgotność względna		-0,27	-0,24	-0,25		-0,43
Ciśnienie na p.m.		-0,36	-0,23	-0,32		
Suma opadu całkowitego	0,27	0,79	0,30	0,58		0,25
Opady ciekłe	0,24	0,81	0,26	0,58	0,19	0,30
Opady śniegowe i lodowe						
N		0,25	0,29	0,40	0,26	0,26
NE		-0,19				
E						
SE		0,30	0,21	0,36		0,36
S				0,24		
SW		-0,21		-0,18		
W						
NW		0,24		0,29		

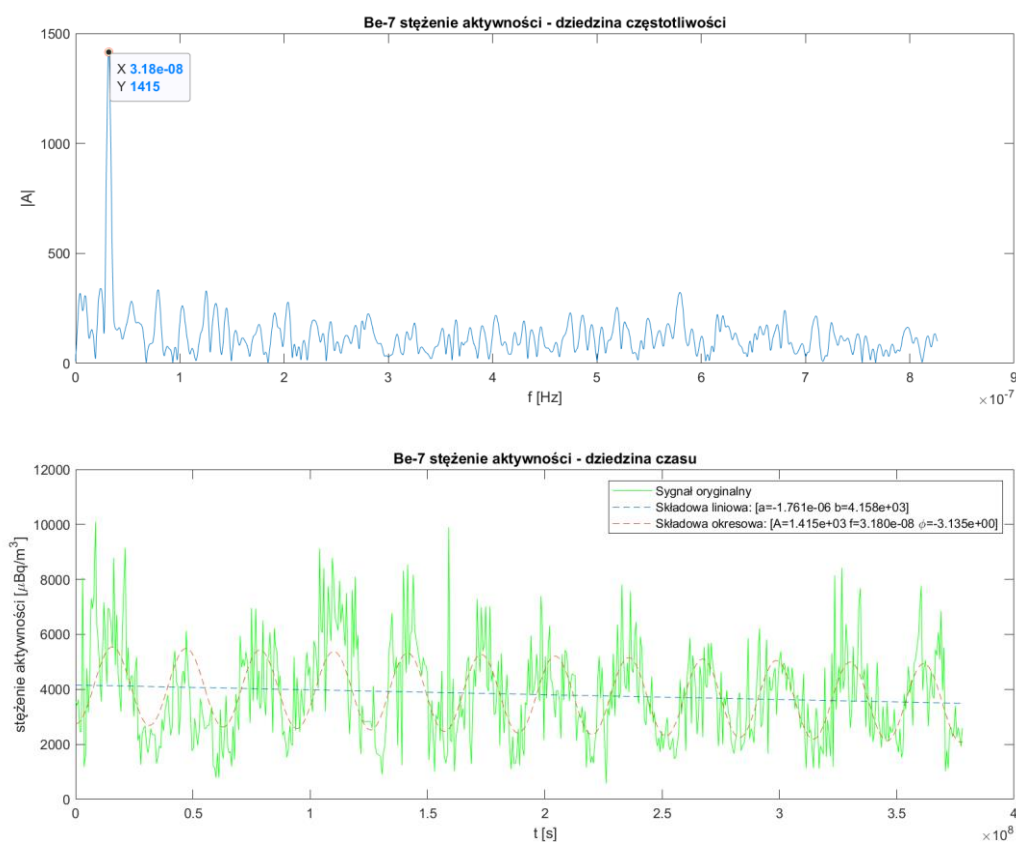
Tabela 89. Istotne statystycznie korelacje wzajemne stężenia aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym i wybranych wskaźników meteorologicznych.

R	Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40	Pu-239+240
Zachmurzenie ogólne		-0,38				
Temp. termometru suchego	-0,25	0,55				
Wilgotność względna		-0,47				-0,27
Ciśnienie na p.m.		-0,24			0,30	
Suma opadu całkowitego	-0,29	0,40	-0,30	-0,27	-0,31	-0,24
Opady ciekłe	-0,31	0,44	-0,28	-0,25	-0,27	
Opady śniegowe i lodowe						
N						
NE	0,22					
E		0,28				
SE		0,34				
S						
SW		-0,32				
W	-0,24					
NW	-0,21				-0,24	

4.12. Analiza struktury szeregów czasowych

W ramach analizy struktury szeregów czasowych stężenia i depozycji aktywności izotopów w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego oraz stężenia aktywności izotopów w próbkach aerozoli atmosferycznych sporządzono wykresy porównawcze szeregu czasowego wraz ze składową liniową i składowymi okresowymi. Analizę wykonano za pomocą oprogramowania Matlab, a napisane skrypty zamieszczono w dodatku 2. W celu uzyskania widma amplitudowego w dziedzinie częstotliwości przeprowadzono szybką dyskretną transformatę Fouriera *fft* z oknem Hanninga, natomiast w celu znalezienia trendu liniowego wykorzystano funkcję *detrend* (obie funkcje wbudowane w oprogramowaniu Matlab). Dokładny opis zastosowanych algorytmów przedstawiono w punkcie 2.5 paragrafu „Materiały i metody”. W tabelach 90-111 zaprezentowano wyniki przeprowadzonej analizy. W przypadku trendu liniowego są to współczynniki kierunkowe prostej a i b oraz parametr $\Delta_{rok}D$ informujący jaki jest roczny bezwzględny spadek badanej wielkości, natomiast w przypadku sygnału okresowego są to amplituda A , częstotliwość f , przesunięcie fazowe φ oraz okres T .

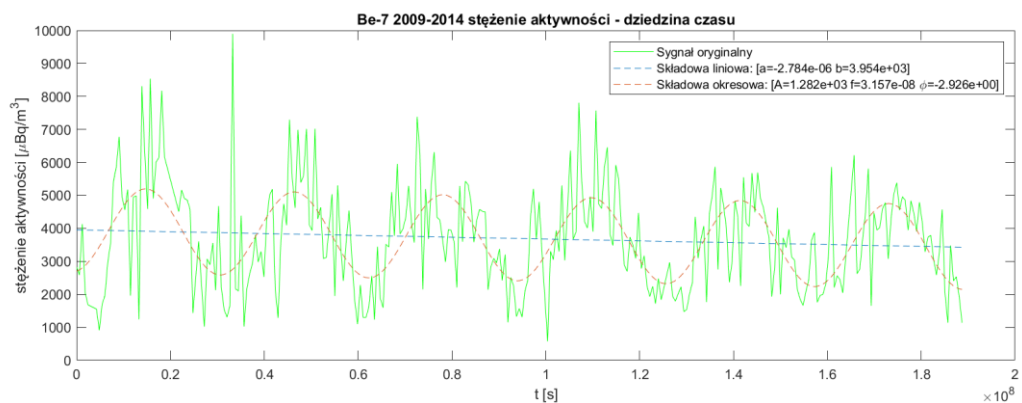
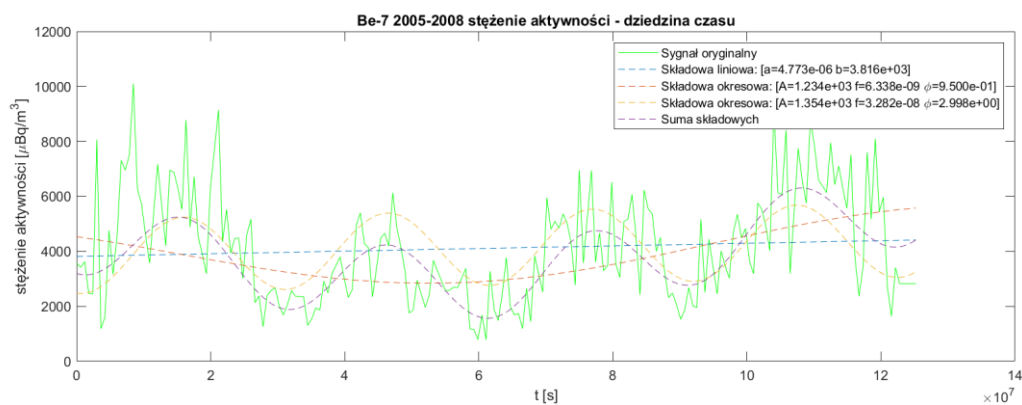
Analiza struktury szeregów czasowych stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych



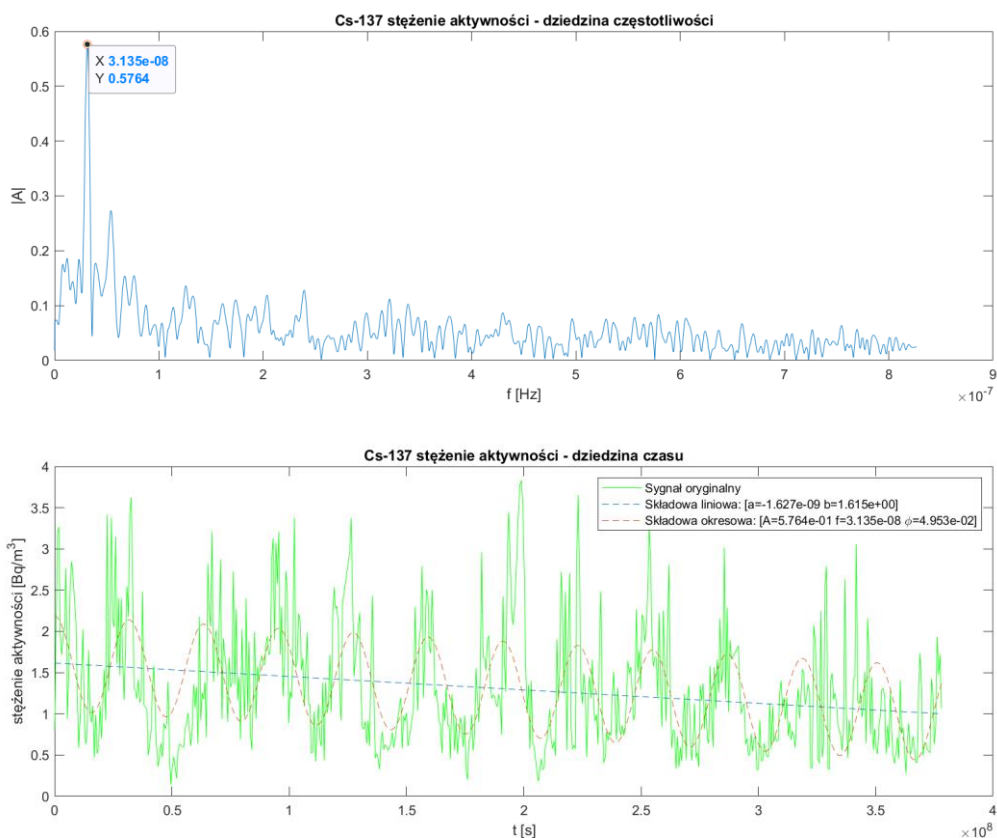
Wykres 107. Stężenie aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawione w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 90. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych.

L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{\mu Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$\Delta_{rok} D \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	
0	Liniowa	-1,761e-06	4,158e+03	-5,557e+01	
		$A \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	1,415e+03	3,180e-08	-3,135	364



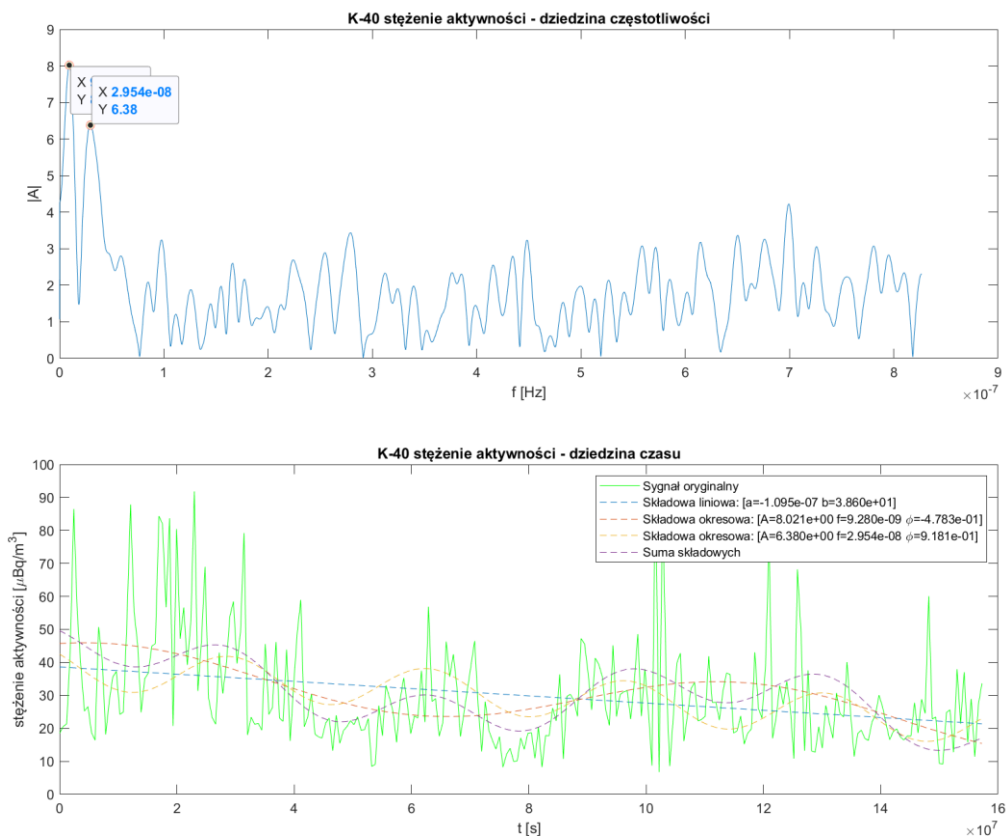
Wykres 108. Stężenie aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych w latach 2005-2008 (cykl słoneczny nr 23) i 2009-2014 (cykl słoneczny nr 24), przedstawione w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.



Wykres 109. Stężenie aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową..

Tabela 91. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych.

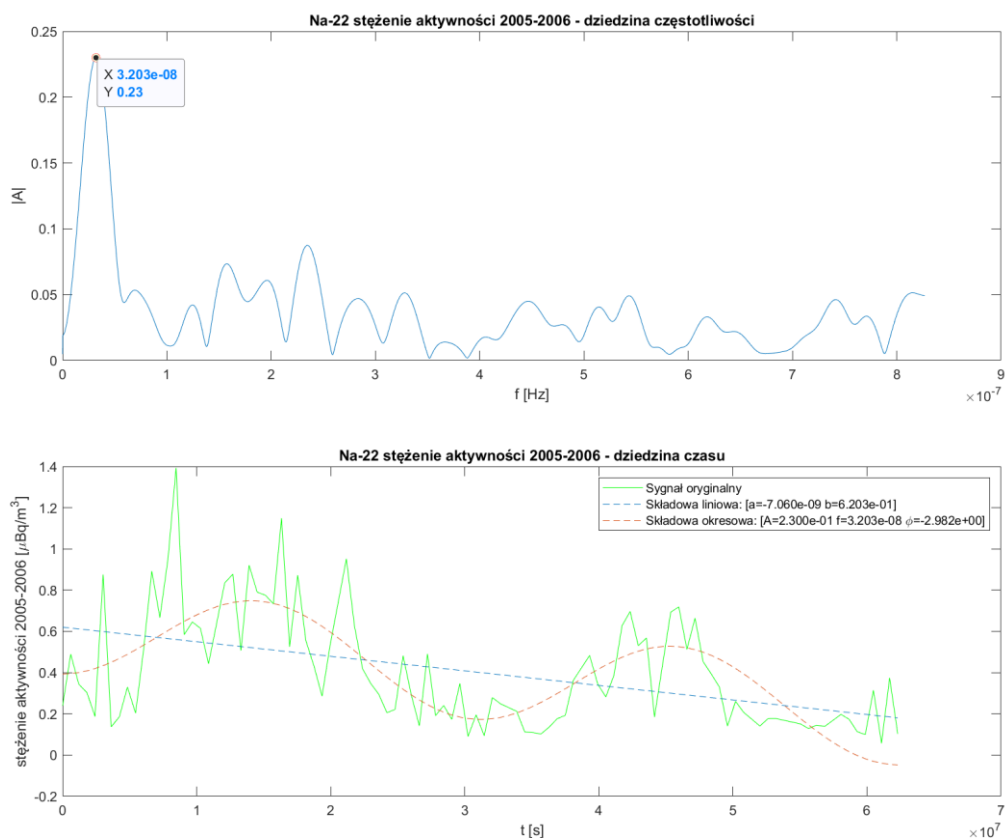
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{\mu Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	$-1,627 \times 10^{-9}$	1,615		$-5,134 \times 10^{-2}$
		$A \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\phi [rad]$	$T [d]$
1	Okresowa	$5,764 \times 10^{-1}$	$3,135 \times 10^{-8}$	$4,953 \times 10^{-2}$	369



Wykres 110. Stężenie aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych w latach 2012-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 92. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2012-2016.

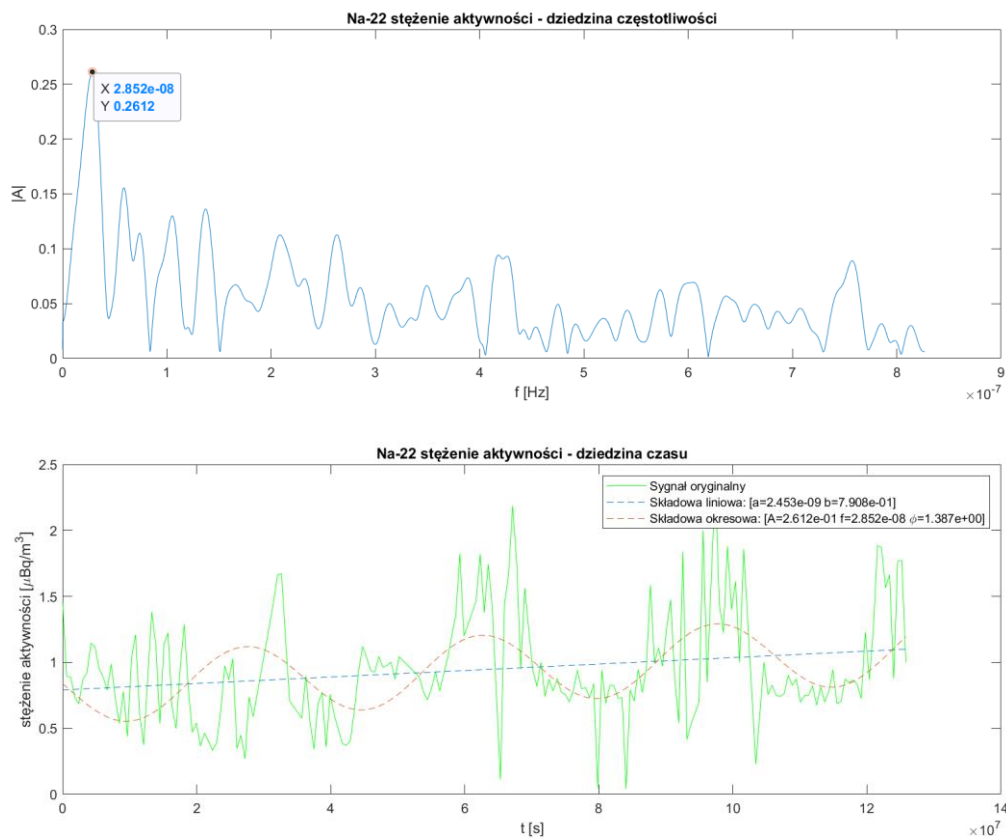
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{\mu Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	-1,095e-07	3,860e+01		-3,456E+00
		$A \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	Okresowa	8,021e+00	9,280e-09	-4,783e-01	1247
2	Okresowa	6,380e+00	2,954e-08	9,181e-01	392



Wykres 111. Stężenie aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2005-2006, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 93. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności N-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2005-2006.

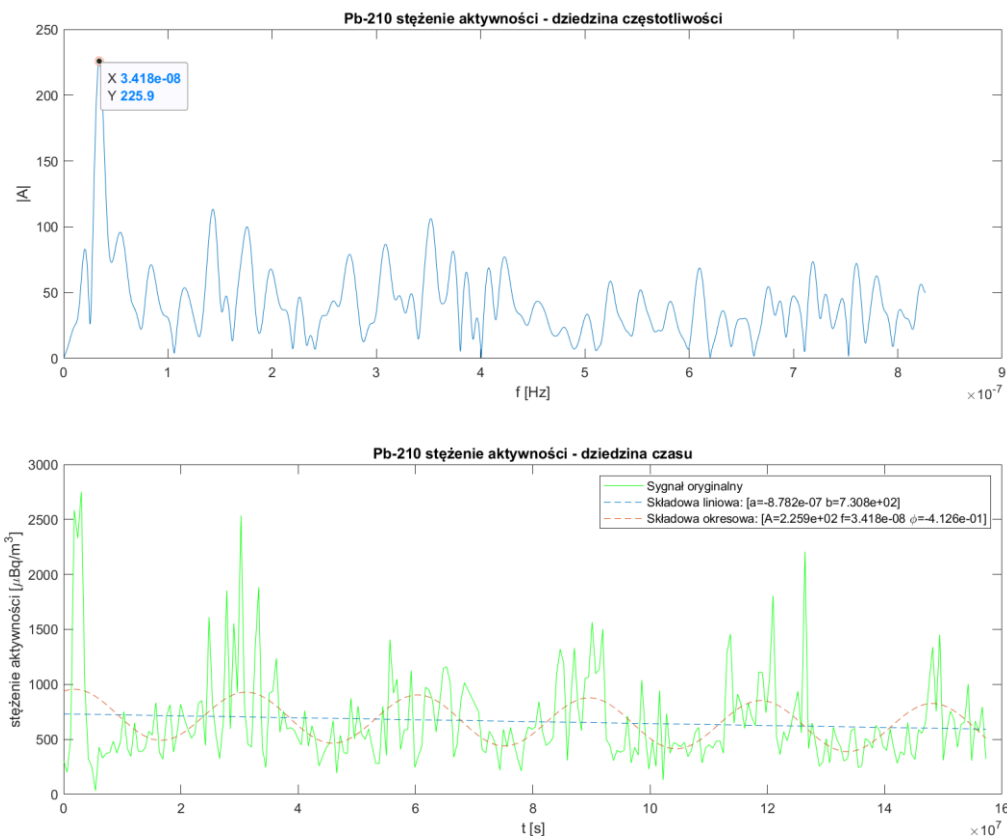
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{\mu Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$\Delta_{rok} D \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	
0	Liniowa	-7,060e-09	6,203e-01	-2,228E-01	
		$A \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	2,300e-01	3,203e-08	-2,982	361



Wykres 112. Stężenie aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2008-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 94. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych w okresie 2008-2016.

L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{\mu Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$\Delta_{rok} D \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	
0	Liniowa	2,453e-09	7,908e-01	7,741E-02	
		$A \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	2,612e-01	2,852e-08	1,387	406

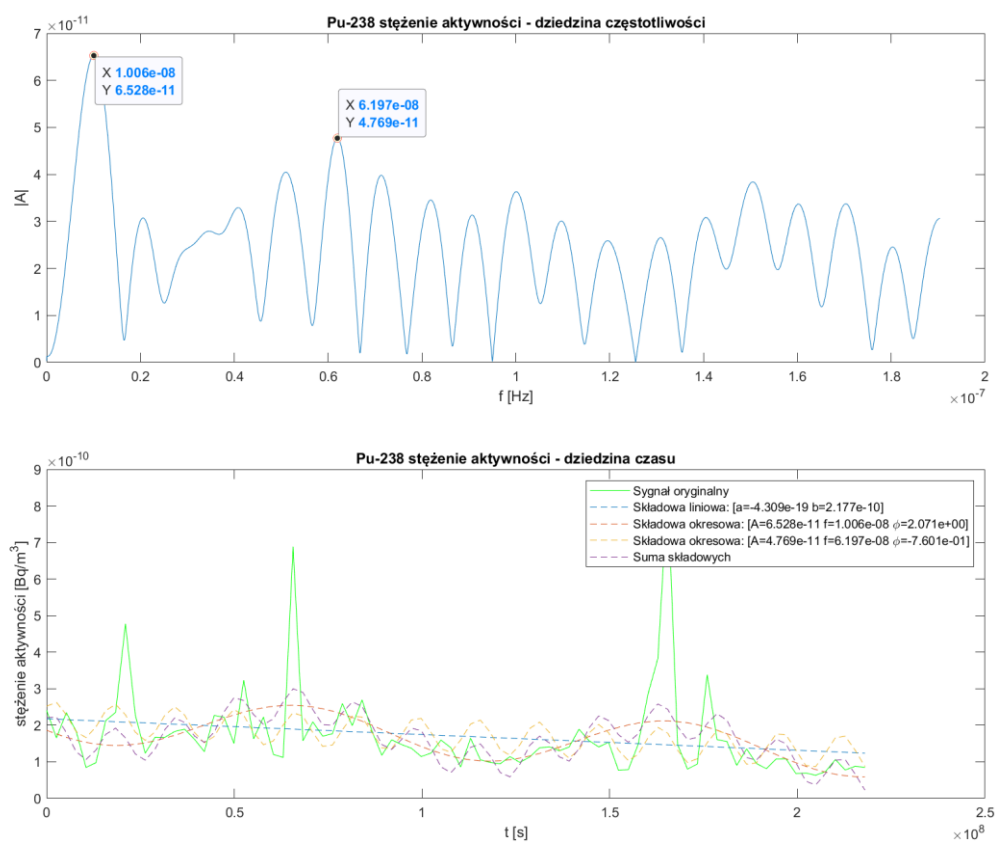


Wykres 113. Stężenie aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych w latach 2012-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 95. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2012-2016.

L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{\mu Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	-8,782e-07	7,308e+02		-2,771E+01
		$A \left[\frac{\mu Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	Okresowa	2,259e+02	3,418e-08	-4,126e-01	339

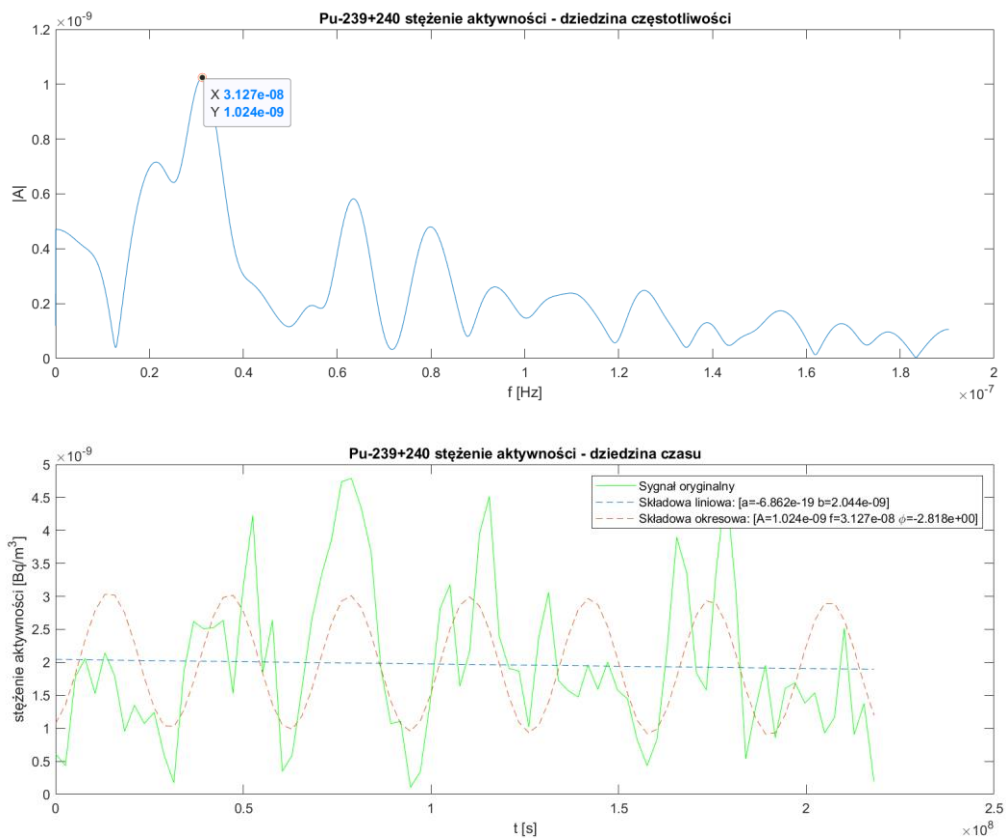
Analiza struktury szeregów czasowych stężenia aktywności izotopów alfa promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych



Wykres 114. Stężenie aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawione w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 96. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych.

L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	-4,309e-19	2,177e-10		-1,360E-11
		$A \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	f [Hz]	ϕ [rad]	T [d]
1	Okresowa	6,528e-11	1,006e-08	2,071	1151
2	Okresowa	4,769e-11	6,197e-08	-7,601e-01	187

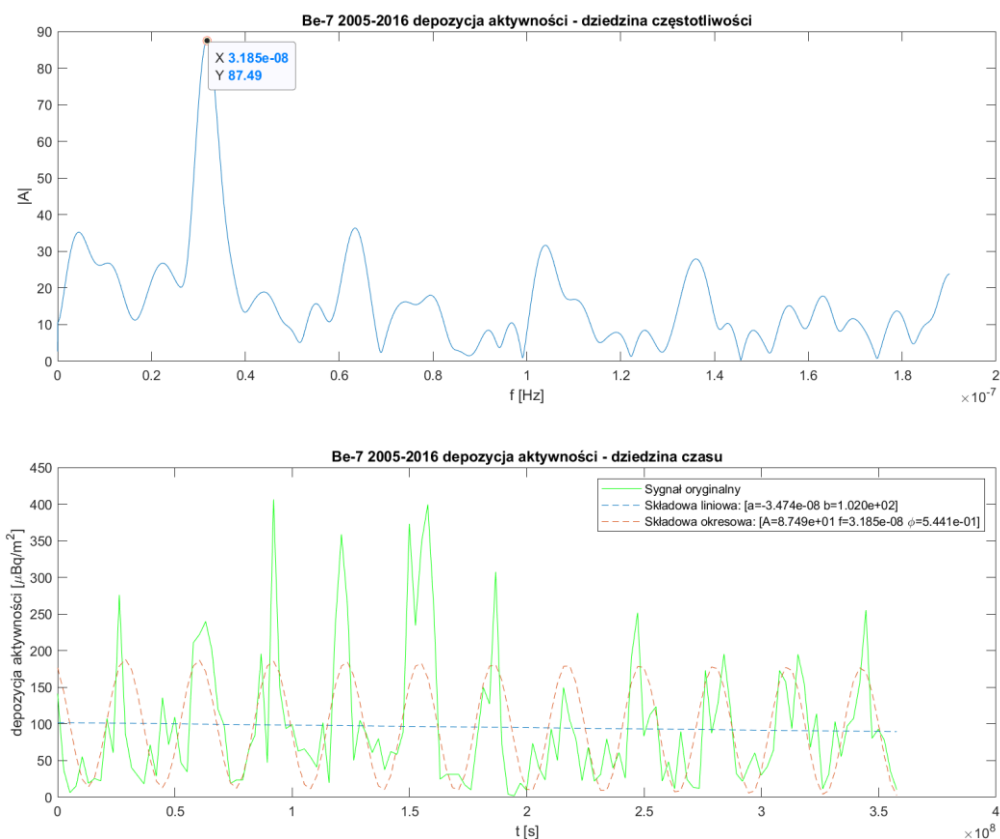


Wykres 115. Stężenie aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawione w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 97. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych.

L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{ok} D \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	-6,862e-19	2,044e-09		-2,165E-11
		$A \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	1,024e-09	3,127e-08	-2,818	370,133

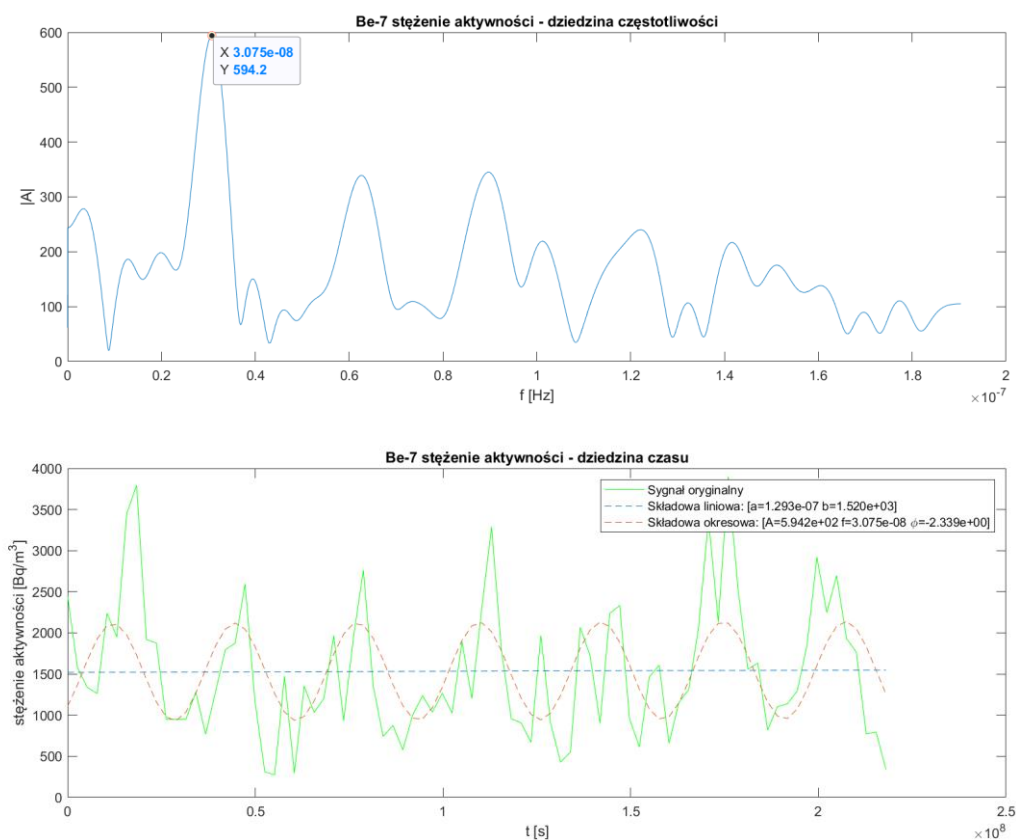
Analiza struktury szeregów czasowych stężenia i depozycji aktywności izotopów alfa i gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego



Wykres 116. Depozycja aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 98. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2005-2016.

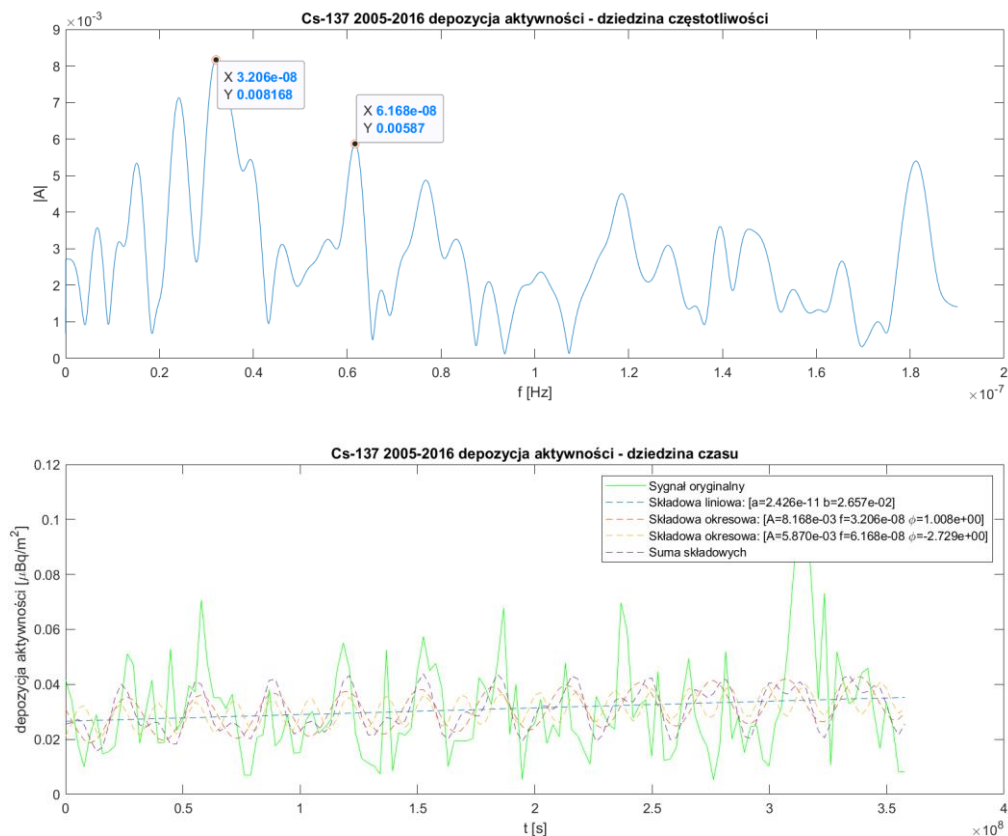
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	Liniowa	-3,474E-08	1,020e+02		-1,096E+00
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	Okresowa	8,749e+01	3,185E-08	5,441e-01	363



Wykres 117. Stężenie aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 99. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2010-2016.

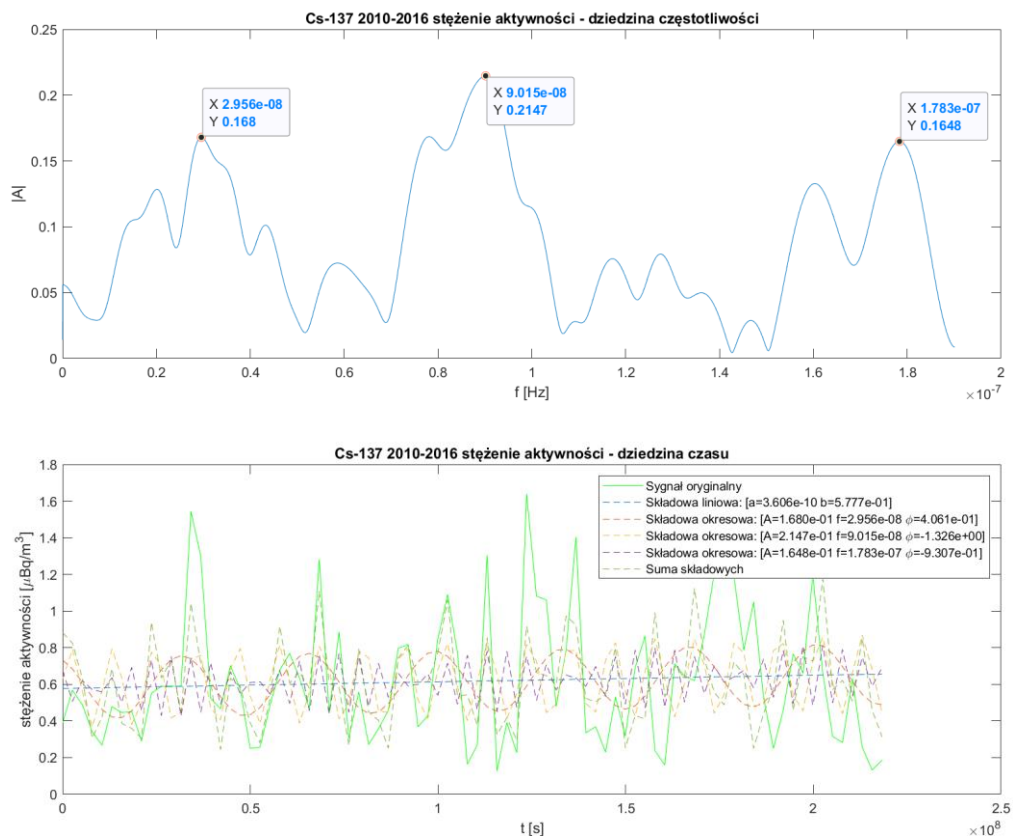
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	1,293e-07	1,520e+03		4,080E+00
		$A \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	5,942e+02	3,075e-08	-2,339	376



Wykres 118. Depozycja aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 100. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2005-2016.

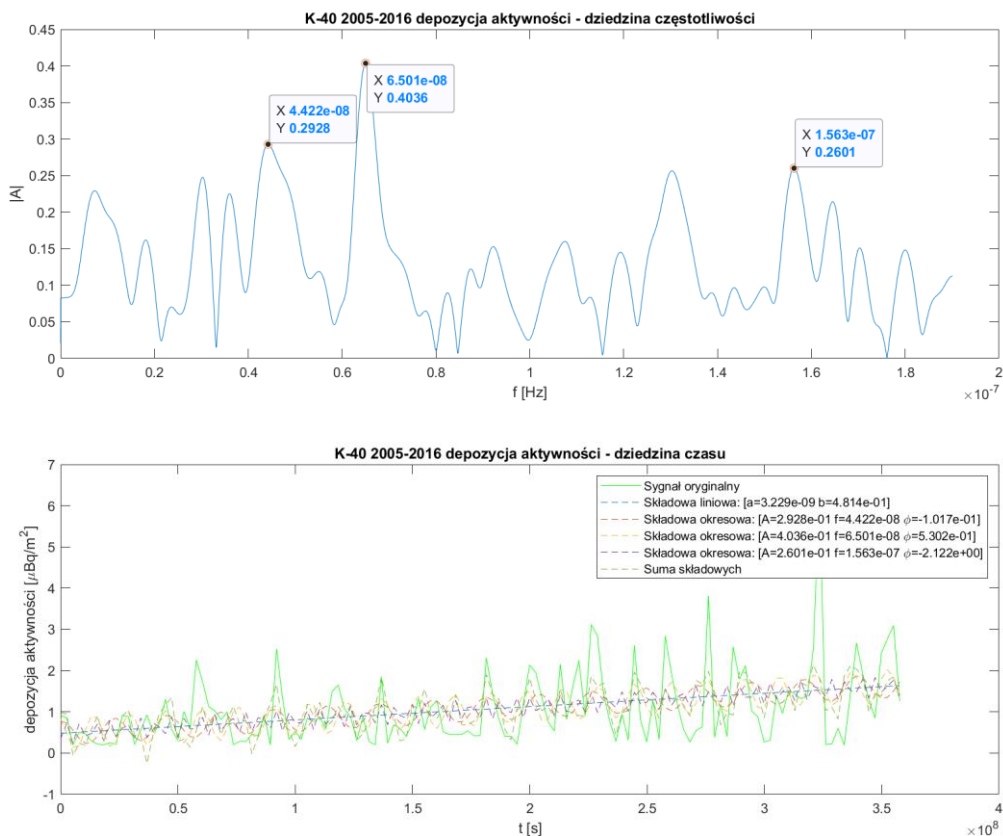
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	Liniowa	2,426E-11	2,657e-02		7,656E-04
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	8,168e-03	3,206E-08	1,008	361
2	okresowa	5,870e-03	6,168E-08	-2,729	188



Wykres 119. Stężenie aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 101. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2010-2016.

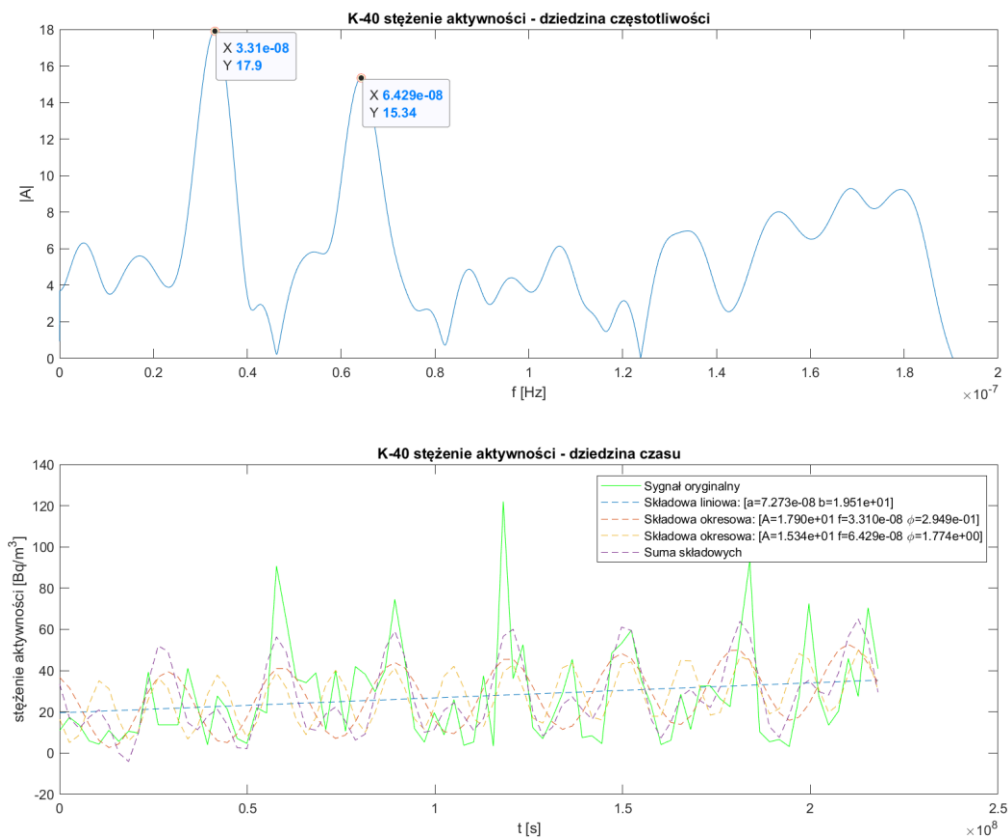
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	3,606E-10	5,777e-01		1,138E-02
		$A \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\phi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	1,680e-01	2,956E-08	4,061e-01	392
2	okresowa	2,147e-01	9,015E-08	-1,326	128
3	okresowa	1,648e-01	1,783E-07	-9,307e-01	65



Wykres 120. Depozycja aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 102. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2005-2016.

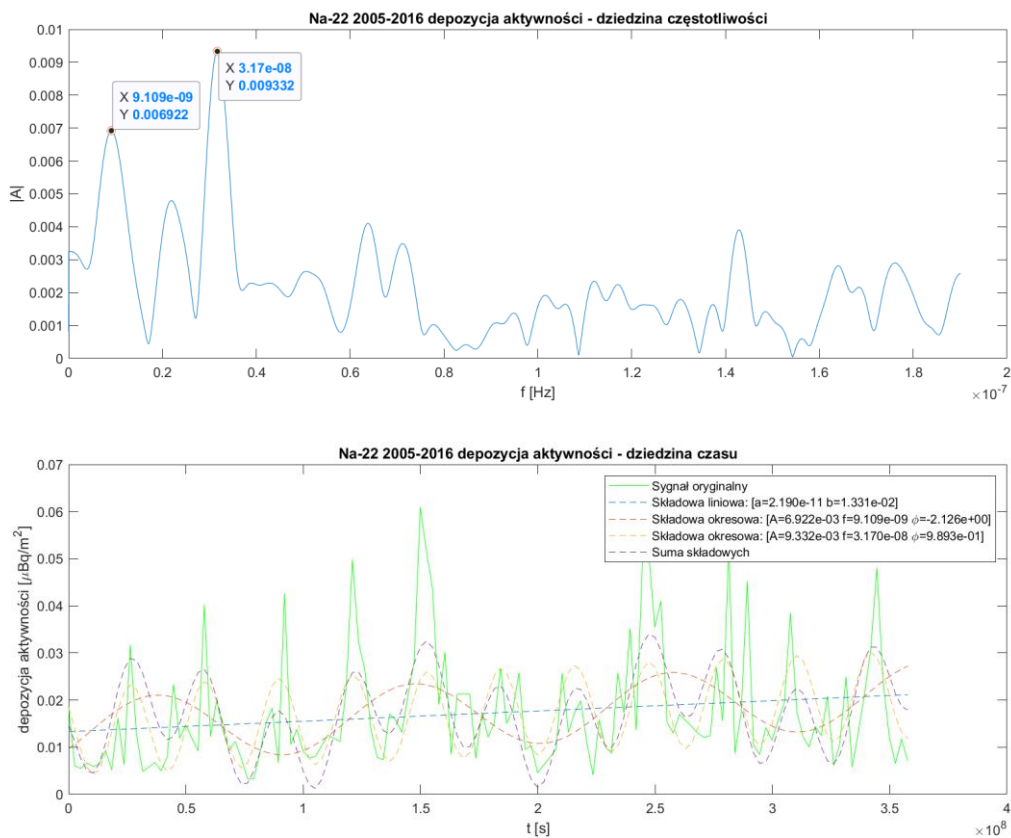
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	Liniowa	3,229E-09	4,814e-01		1,019E-01
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	2,928e-01	4,422E-08	-1,017e-01	262
2	okresowa	4,036e-01	6,501E-08	5,302e-01	178
3	okresowa	2,601e-01	1,563E-07	-2,122	74



Wykres 121. Stężenie aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 103. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych 2010-2016.

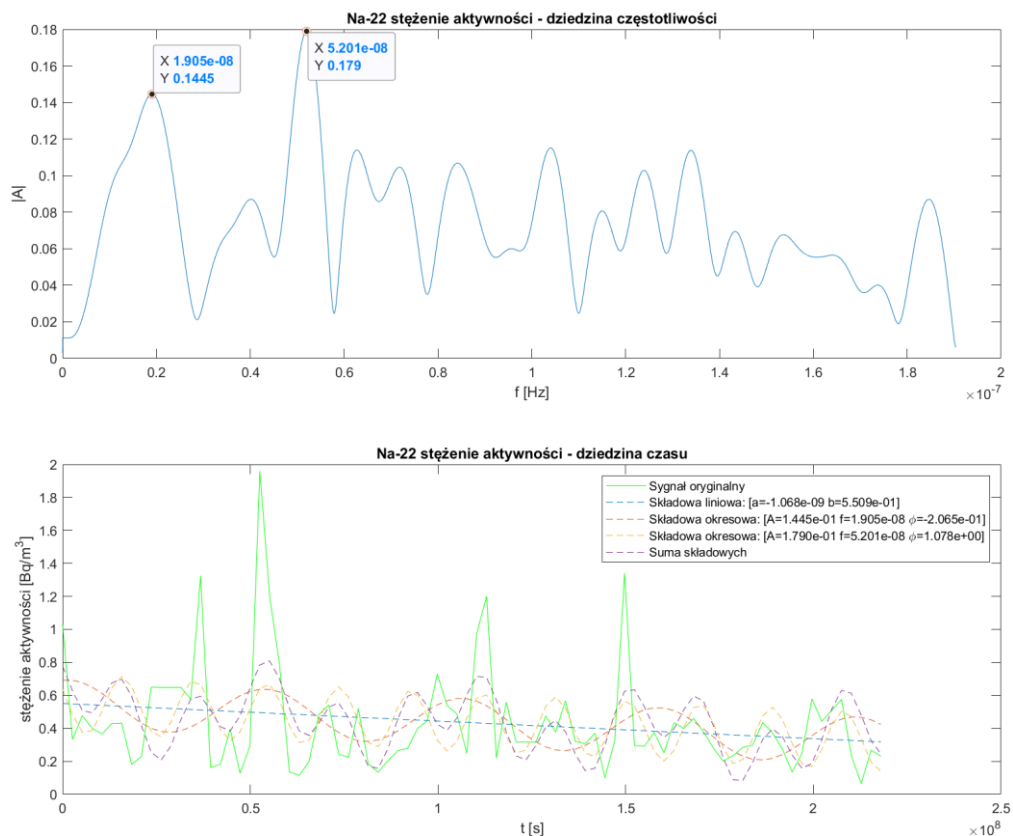
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	7,273e-08	1,951+01		2,295E+00
		$A \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	1,790e+01	3,310e-08	2,949e-01	350
2	okresowa	1,534e+01	6,429e-08	1,774	180



Wykres 122. Depozycja aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 104. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych 2005-2016.

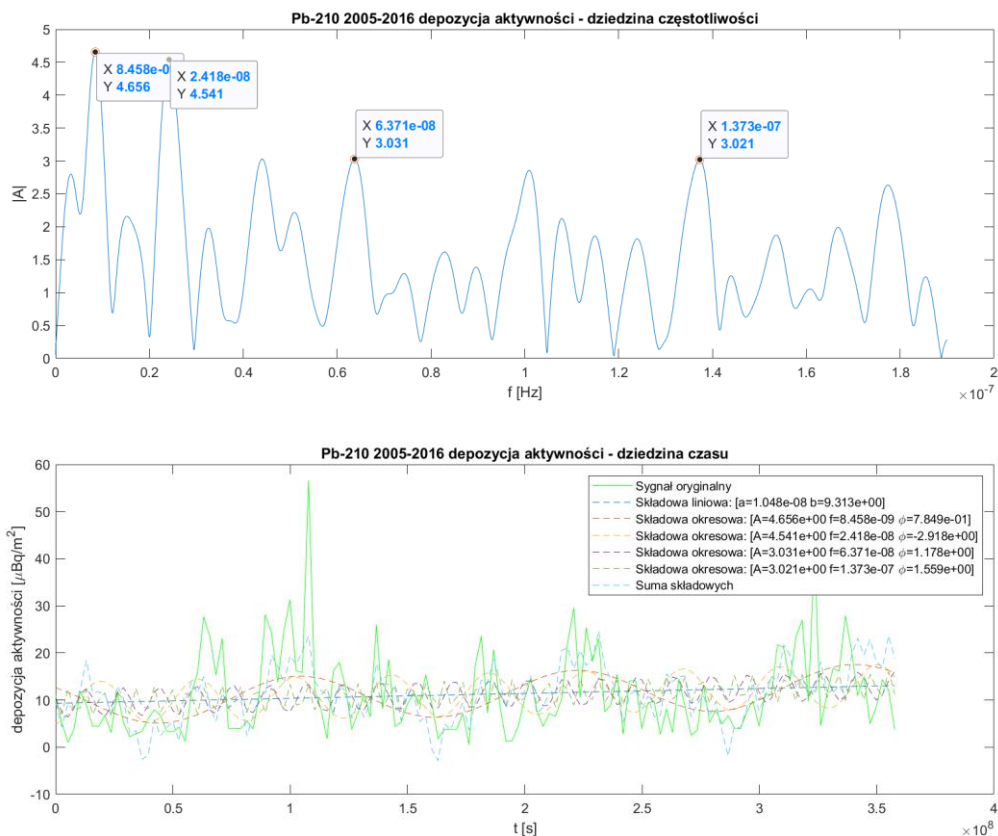
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	Liniowa	2,190E-11	1,331e-02		6,911E-04
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\phi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	6,922e-03	9,109E-09	-2,126	1271
2	okresowa	9,332e-03	3,170E-08	9,893e-01	365



Wykres 123. Stężenie aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 105. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych 2010-2016.

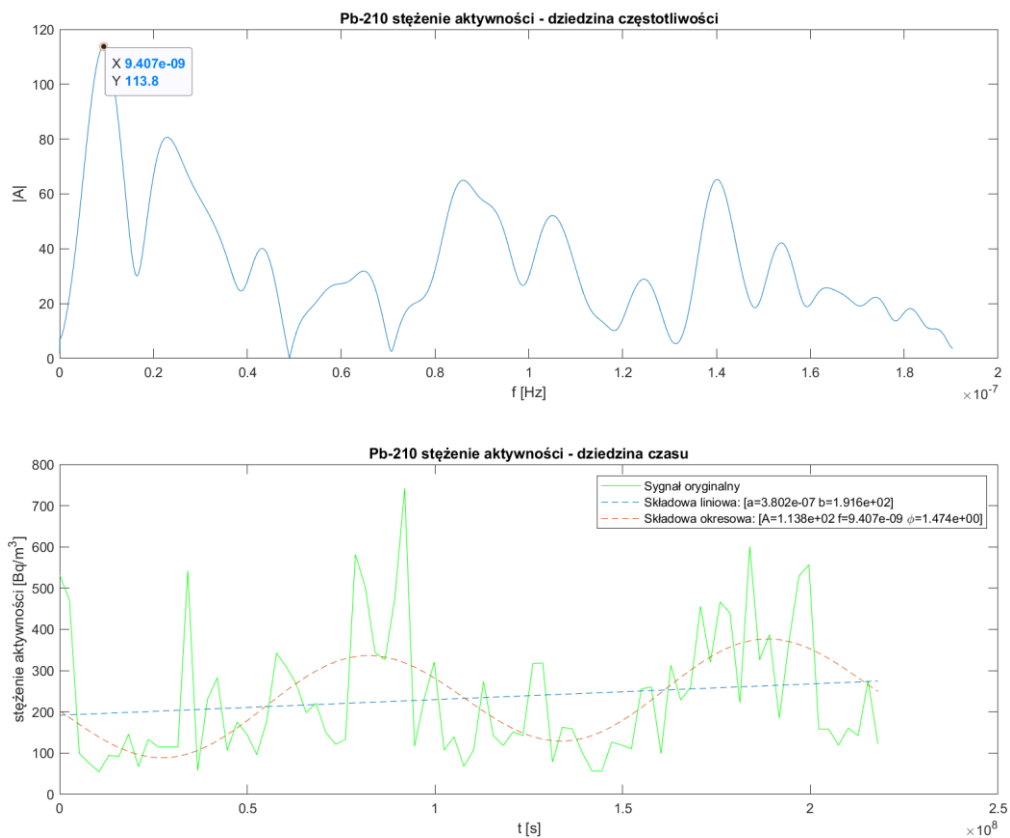
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	-1,068e-09	5,509e-01		-3,370E-02
		$A \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\phi [rad]$	$T [d]$
1	Okresowa	1,445e-01	1,905e-08	-2,065e-01	608
2	Okresowa	1,790e-01	5,201e-08	1,078	223



Wykres 124. Depozycja aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 106. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych 2005-2016.

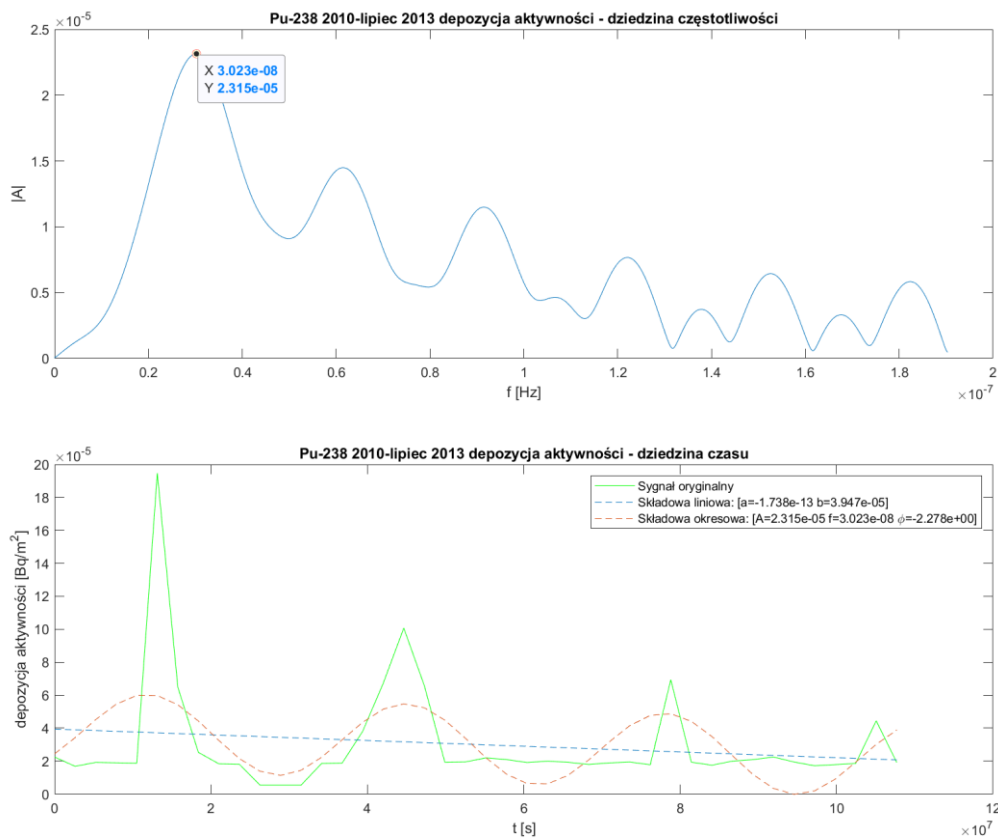
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	Liniowa	1,048E-08	9,313e+00		3,307E-01
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	4,656e+00	8,458E-09	7,849e-01	1368
2	okresowa	4,541e+00	2,418E-08	-2,918	479
3	okresowa	3,031e+00	6,371E-08	1,178	182
4	okresowa	3,021e+00	1,373E-07	1,559	84



Wykres 125. Stężenie aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.

Tabela 107. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych 2010-2016.

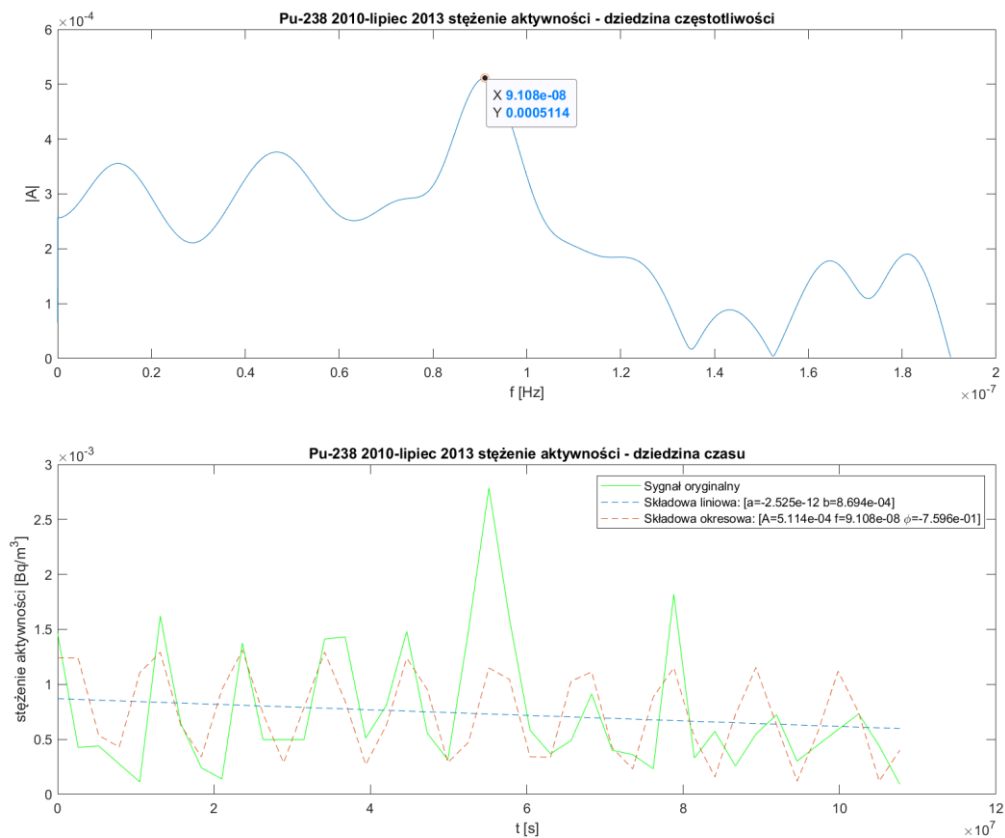
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^3} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$
0	Liniowa	3,802e-07	1,916e+02		1,200E+01
		$A \left[\frac{Bq}{m^3} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	1,138e+02	9,407e-09	1,474	1230



Wykres 126. Depozycja aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.

Tabela 108. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.

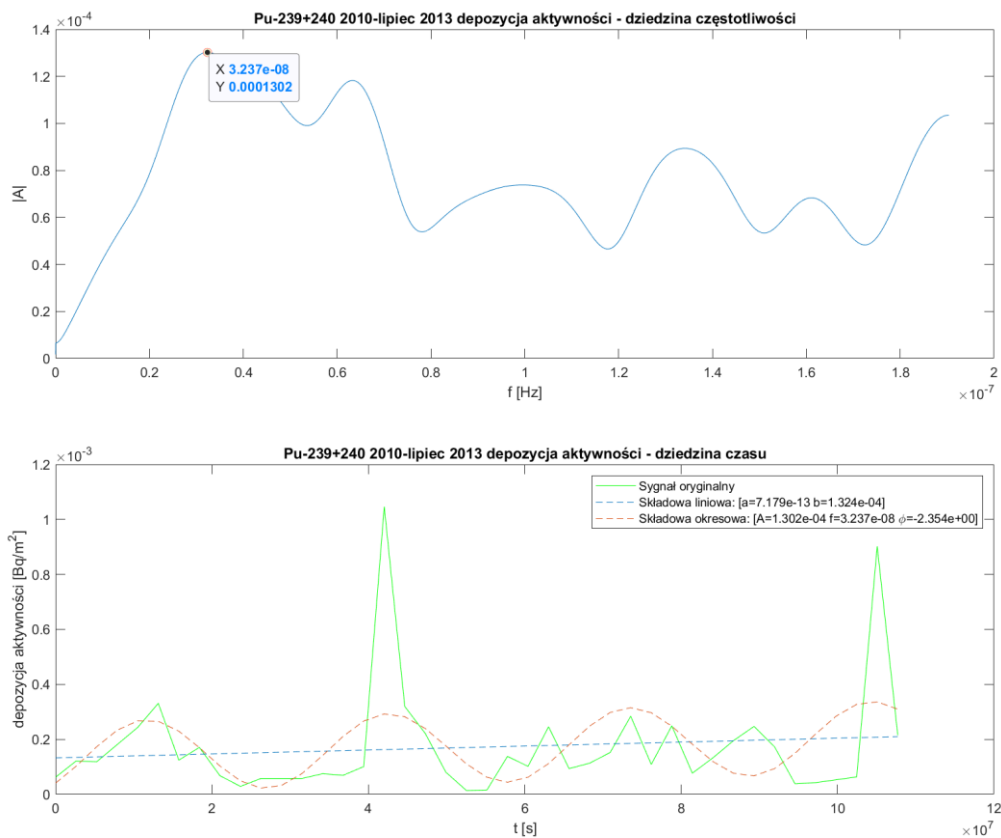
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	Liniowa	-1,738e-13	3,947e-05		-5,485E-06
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\phi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	2,315e-05	3,023e-08	-2,278	383



Wykres 127. Stężenie aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.

Tabela 109. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.

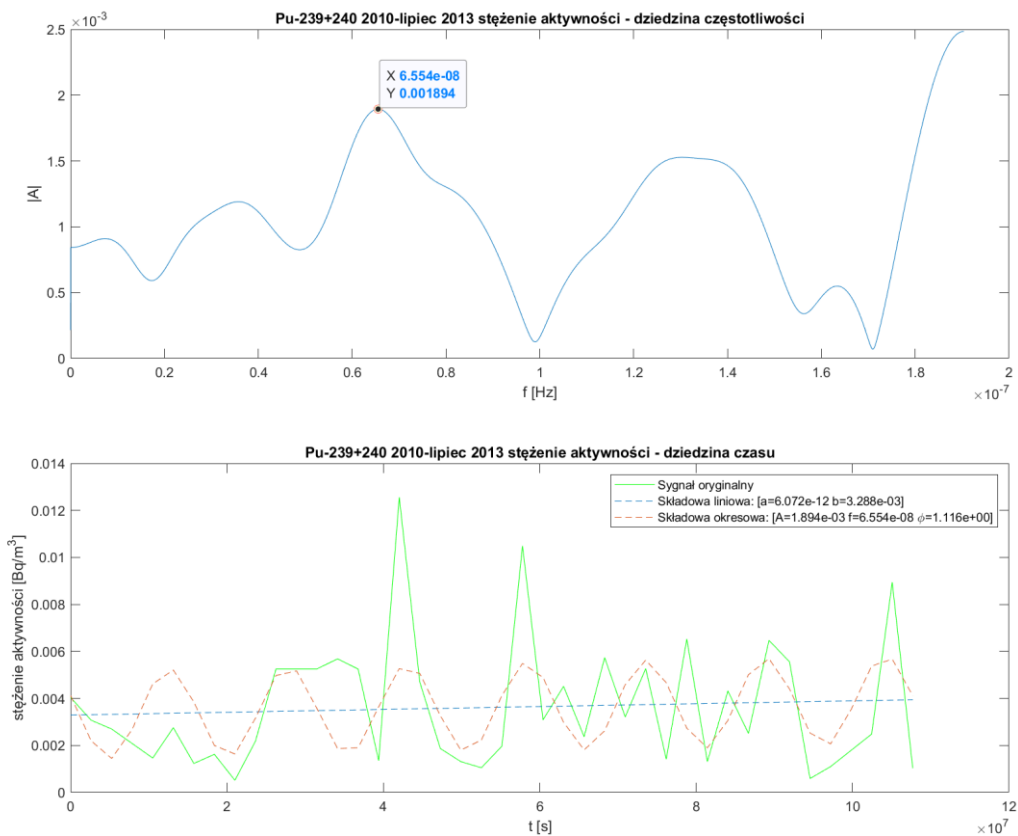
L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	Liniowa	-2,525e-12	8,694e-04		-7,968E-05
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	Okresowa	5,114e-04	9,108e-08	-7,596e-01	127



Wykres 128. Depozycja aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.

Tabela 110. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.

L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	liniowa	7,179e-13	1,324e-04		2,266E-05
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	1,302e-04	3,237e-08	-2,354	358



Wykres 129. Stężenie aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.

Tabela 111. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.

L.p.	Typ	Parametry			Trend
		$a \left[\frac{Bq}{s \cdot m^2} \right]$	$b \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$		$\Delta_{rok} D \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$
0	liniowa	6,072e-12	3,288e-03		1,916E-04
		$A \left[\frac{Bq}{m^2} \right]$	$f [Hz]$	$\varphi [rad]$	$T [d]$
1	okresowa	1,894e-03	6,554e-08	1,116	177

W wyniku analizy struktury szeregów czasowych stężenia aktywności wybranych izotopów w próbkach aerozoli atmosferycznych oraz stężenia i depozycji aktywności w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego zaobserwowano następujące trendy sezonowe:

- ✓ w próbkach aerozoli atmosferycznych
 - występowanie rocznej okresowości w zmienności stężenia aktywności wszystkich izotopów oprócz Pu-238 (dla którego zanotowano zmienność półroczną); dla Be-7, Cs-137, Pu-239+240 i Na-22 (lata 2005-2006) jest to jedyna zaobserwowana okresowość, natomiast dla K-40 i Pu-238 zaobserwowano dodatkowo okresowość 3 letnią

- ✓ w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego
 - występowanie rocznej okresowości w zmienności stężenia aktywności Be-7, K-40 i Cs-137; dla K-40 i Cs-137 zanotowano dodatkowo sezonowość półroczną, która pojawiła się również w zmienności stężenia izotopów plutonu; w przypadku Cs-137 zaobserwowano ponadto sezonowość kwartalną, natomiast sezonowość kilkuletnią zanotowano dla Na-22 (1,5 roku) jak i Pb-210 (3 lata); dla Na-22 zaobserwowano również okresowość wynoszącą w przybliżeniu 2/3 roku
 - występowanie rocznej okresowości w zmienności depozycji aktywności wszystkich izotopów oprócz K-40, dla którego zaobserwowano zmienność kwartalną, półroczną oraz wynoszącą 2/3 roku; zmienność kwartalną i półroczną zanotowano również dla Pb-210; dla Pb-210 i Na-22 zaobserwowano też okresowość 3 letnią

Zarówno w przypadku szeregów czasowych stężenia aktywności izotopów w próbkach aerozoli atmosferycznych jak i szeregów czasowych stężenia i depozycji aktywności izotopów w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego zaobserwowano występowanie trendu liniowego. Na podstawie uzyskanej funkcji liniowej wyznaczono roczną zmianę mierzonej wielkości $\Delta_{rok}D$ i porównano ją z roczną wartością średnią mierzonej wielkości. Dla wszystkich rozważanych izotopów, oszacowany spadek lub wzrost, wynikający z istnienia trendu liniowego nie przekraczał 1,5%. Na podstawie otrzymanych informacji trudno jednak wyciągnąć jednoznaczne wnioski o źródle zaobserwowanych wzrostów i spadków, z uwagi na występujące niespójności zbioru danych (różne detektory, różne konfiguracje filtrów), który wprowadza pewne zaburzenie (być może odpowiada za różnice w charakterystyce trendów liniowych w zależności od długości analizowanego szeregu).

4.13. Próba oszacowania dawek pochodzących od ekspozycji zewnętrznej i wewnętrznej na promieniowanie jonizujące emitowane przez wybrane izotopy zawarte w powietrzu

Oszacowanie rocznej dawki równoważnej pochodzącej od narażenia zewnętrznego na promieniowanie gamma emitowane przez izotopy Be-7, Na-22, K-40, Pb-210 i Cs-137 zawarte w powietrzu

W celu wyznaczenia rocznej dawki równoważnej pochodzącej od promieniowania gamma emitowanego przez wybrane izotopy gamma promieniotwórcze zawarte w powietrzu wykorzystano algorytm opisany w punkcie 2.5 rozdziału II.

W poniższej tabeli przedstawiono wartości C i \overline{E}_γ dla poszczególnych izotopów wykorzystane do obliczeń oraz wyznaczone roczne dawki równoważne. Jako C przyjęto średnie stężenie aktywności rozważanych izotopów w powietrzu (średnia uzyskana na podstawie próbek miesięcznych), a jako \overline{E}_γ średnią energię kwanów gamma emitowaną podczas pojedynczego rozpadu.

Tabela 112. Roczne dawki równoważne uzyskane dla poszczególnych izotopów gamma promieniotwórczych.

Izotop	\overline{E}_γ [MeV]	C [Bq/m ³]	\dot{H} [Sv/rok]
Be-7	0,048	3,63E-03	8,61E-10
Na-22	2,283	6,98E-07	7,91E-12
Cs-137	0,566	2,25E-06	6,32E-12
K-40	0,146	2,93E-05	2,12E-11
Pb-210	0,002	6,04E-04	5,87E-12
Sumaryczna dawka równoważna			0,9E-09

Całkowita roczna dawka równoważna pochodząca od ekspozycji zewnętrznej na promieniowanie gamma emitowane przez rozważane izotopy wynosi 0,9 nSv.

Oszacowanie rocznej efektywnej dawki obciążającej pochodzącej od narażenia wewnętrznego związanego z inhalacją wybranych izotopów alfa i gamma promieniotwórczych

W celu wyznaczenia rocznej efektywnej dawki obciążającej skorzystano z algorytmu zamieszczonego w punkcie 2.5 rozdziału II. Wartości jednostkowych dawek obciążających przyjęto korzystając z tabeli 13 zamieszczonej w punkcie 7 rozdziału I, natomiast objętości wdychanego powietrza (uśrednione dla obojga płci), przedstawiono w poniższej tabeli.

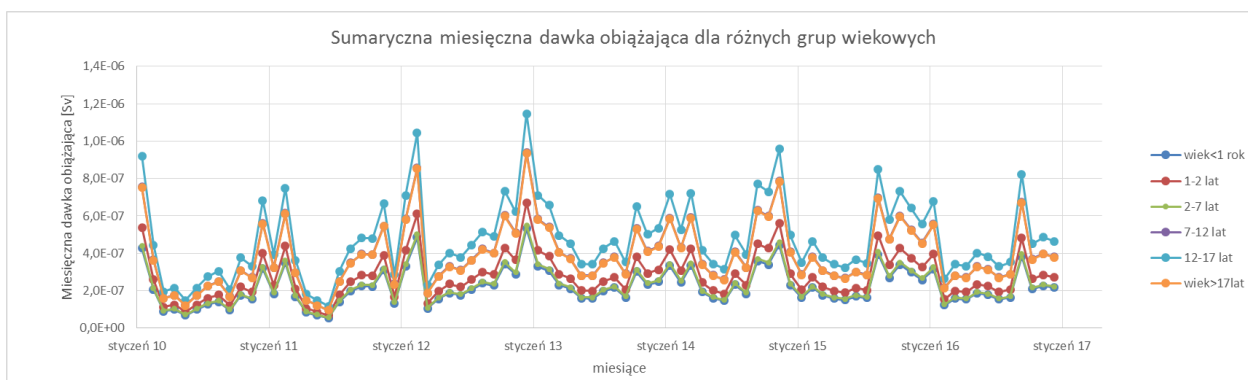
Tabela 113. Średnia dobowa i miesięczna objętość wdychanego powietrza z podziałem na grupy wiekowe [75].

V powietrza [m ³]	< 1 rok	1-2 lat	2-7 lat	7-12 lat	12-17 lat	>17 lat
dzienna	2,6	5,3	8,4	15,4	20,2	23,8
miesięczna	78	159	252	462	606	714

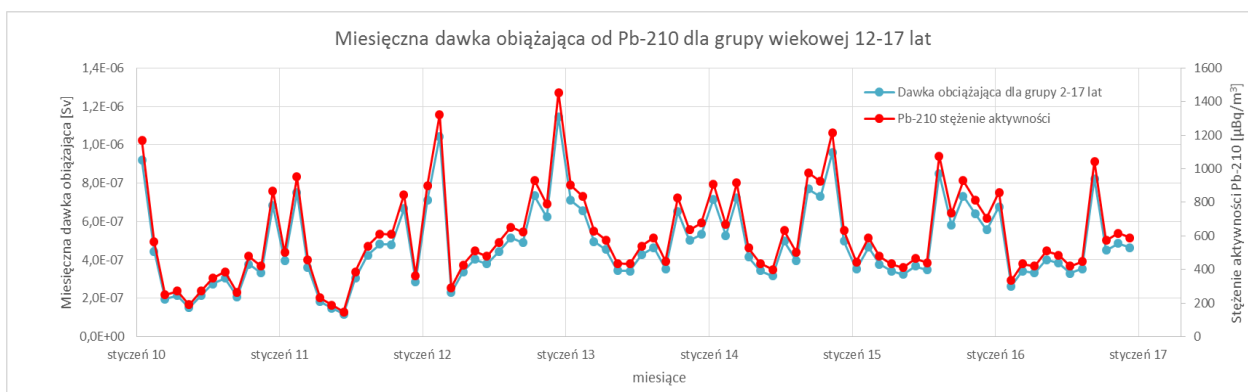
Wyniki rocznych dawek obciążających pochodzących od inhalacji rozważanych izotopów oraz sumaryczną roczną efektywną dawkę obciążającą przedstawiono w tabeli 114.

Tabela 114. Roczne efektywne dawki obciążające od inhalacji poszczególnych izotopów z podziałem na grupy wiekowe.

Izotop	Wiek g< 1 rok	1-2 lat	2-7 lat	7-12 lat	12-17 lat	>17 lat
K-40	6,6E-10	9,5E-10	6,6E-09	7,3E-10	5,3E-10	5,3E-10
Na-22	6,3E-12	9,7E-12	8,0E-12	9,3E-12	7,6E-12	7,8E-12
Cs-137	1,9E-11	2,3E-11	2,4E-11	4,6E-11	7,2E-11	8,9E-11
Pb-210	2,7E-06	3,3E-06	2,7E-06	4,7E-06	5,7E-06	4,7E-06
Be-7	8,5E-10	1,5E-09	1,3E-09	1,7E-09	1,6E-09	1,6E-09
Pu-238+240	4,0E-10	7,8E-10	9,3E-10	1,4E-09	1,6E-09	2,1E-09
Pu-238+240	3,2E-11	6,2E-11	7,2E-11	1,0E-10	1,2E-10	1,6E-10
Sumaryczna roczna dawka obciążająca [Sv]	2,7E-06	3,3E-06	2,8E-06	4,7E-06	5,7E-06	4,7E-06



Wykres 130. Zmienność w czasie sumarycznej miesięcznej efektywnej dawki obciążającej pochodzącej od rozważanych izotopów z podziałem na grupy wiekowe.



Wykres 131. Zmienność w czasie miesięcznej efektywnej dawki obciążającej pochodzącej od inhalacji wszystkich rozważanych izotopów dla grupy wiekowej 12-17 lat wraz ze zmiennością stężenia aktywności Pb-210.

Z przeprowadzonej analizy wynika, że najwyższe dawki obciążające pochodzą od inhalacji Pb-210, natomiast najbardziej narażoną grupą są osoby między 12 i 17 rokiem życia. Na wykresach

przedstawiono zmienność w czasie sumarycznej dawki obciążającej pochodzącej od wszystkich rozważanych izotopów z podziałem na grupy wiekowe, a także przebieg zmienności całkowitej miesięcznej dawki obciążającej dla najbardziej narażonej grupy wraz z przebiegiem zmienności stężenia aktywności Pb-210. Z wykresów 130-131 oraz tabeli 114 wynika, że całkowita obciążająca dawka skuteczna pochodzi jedynie od inhalacji Pb-210 (wpływ pozostałych izotopów jest pomijalnie mały), w związku z tym zmienność w czasie poziomu sumarycznej dawki obciążającej jest zdeterminowana przez dynamikę zmian stężenia aktywności Pb-210 w powietrzu.

III. Dyskusja wyników, wnioski i podsumowanie

Wyniki pomiarowe stężenia aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych. Dyskusja i wnioski.

W ramach niniejszej pracy uzyskano wyniki pomiarowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych: Na-22, Be-7, Cs-137, K-40 oraz Pb-210 w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych zebranych w latach 2005-2016 oraz wyniki pomiarowe stężenia aktywności izotopów alfa promieniotwórczych Pu-238 oraz Pu-239+240 w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych (głównie próbki 4 tygodniowe) zebranych w latach 2010-2016. Dla otrzymanego zbioru danych wyznaczono następnie wybrane elementy statystyki opisowej, której wyniki zamieszczono w tabelach nr 26 i 27.

Zaobserwowane stężenie aktywności Be-7 w badanych próbkach wahało się od 0,6 do 10,1 mBq/m^3 uzyskując średnią wartość 3,8 mBq/m^3 . Podobny zakres zmienności został zaobserwowany dla innych miejsc poboru próbek takich jak Malaga w Hiszpanii (2,5-14,9 mBq/m^3) [87], Monaco (0,93-13,1 mBq/m^3) [88], Thessaloniki w Grecji (0,47-12,7 mBq/m^3) [89], Bratysława na Słowacji (0,2-5,5 mBq/m^3) [90], czy północ Szwecji (0,5-9 mBq/m^3) [91]. Na podstawie badań własnych, najwyższe wartości stężenia aktywności Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie zaobserwowano w sezonie wiosennym i letnim, w których poziom stężenia aktywności był średnio ok. 1,5 krotnie wyższy niż w sezonie jesiennym i zimowym (tabela 27). Tego typu zmienność sezonowa jest skutkiem procesów zachodzących w górnych warstwach atmosfery. Wiosną i latem, w wyniku wzrostu temperatury dochodzi do poszerzenia tropopauzy i intensywnego mieszania się mas powietrza między troposferą i stratosferą, w wyniku czego wraz z pionowym transportem mas powietrza, następują tzw. „wstrzyknięcia” izotopów kosmogenicznych do stratosfery [72,90]. Zmienność sezonowa, w postaci rocznej okresowości została też pokazana przy pomocy dyskretnej transformaty Fouriera, której wyniki zamieszczono w tabeli 90. Oprócz okresowości, wynikiem analizy struktury szeregu czasowego było zidentyfikowanie ujemnego trendu liniowego (wykres 107), który poddano dalszej analizie. Na długookresową zmienność stężenia aktywności Be-7 w powietrzu wpływa cykliczna aktywność Słońca, której podstawowy okres wynosi ok. 11 lat [92]. Wzrost aktywności

słonecznej powoduje zmniejszenie ilości promieniowania kosmicznego docierającego do atmosfery ziemskiej (efekt Forbusha)[116], co powoduje zmniejszenie produkcji izotopów kosmogenicznych w górnych partiach atmosfery i w związku z tym mniejsze stężenia aktywności rejestrowane w przygruntowej warstwie powietrza. Okres pomiarowy 2005-2016 obejmował częściowo dwa cykle słoneczne: nr 23 i 24. Zmiana cyklu nastąpiła w grudniu 2008 roku. W okresie od 2005 do 2009 roku aktywność słońca systematycznie malała, następnie od 2009 roku do 2015 roku rosła, po czym zaczęła znów maleć [94]. Aby sprawdzić czy ta tendencja jest widoczna dla otrzymanego zbioru danych stężenia aktywności Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza, wykonano powtórny analizę trendu dla szeregów czasowych z okresów 2005-2008 oraz 2009-2014. Wyniki zamieszczono na zbiorczym wykresie 108. Z analizy wykresu wynika, że po rozbiciu szeregu na dwa okresy trend liniowy dla każdego z nich ma inną charakterystykę. W okresie 2005-2009 zaobserwowany trend liniowy jest dodatni, co świadczy o wzroście stężenia aktywności Be-7 w mierzonych próbkach, natomiast dla okresu 2009-2014 jest ujemny. Wyniki te potwierdzają długookresową zmienność stężenia aktywności Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza związaną z cykliczną zmiennością Słońca. Badanie zależności stężenia aktywności Be-7 od aktywności słonecznej przy użyciu analizy Fouriera wykonane zostało również przez innych badaczy dla próbek aerozoli atmosferycznych zebranych w latach 1995-2015 w Belgradzie, w Serbii [93]. Analiza Fouriera wykazała obecność dwóch okresowości rocznej oraz 22-letniej, związanej ze zmiennością pola magnetycznego Słońca. Z uwagi na znacznie krótszy okres pomiarowy badany w ramach tej pracy, za pomocą przeprowadzonej transformaty Fouriera nie udało się zaobserwować okresu 22 letniego. Pomimo to, dzięki analizie trendów liniowych zaobserwowano zależność stężenia Be-7 od cyklu słonecznego.

W celu zbadania zależności stężenia aktywności Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza od warunków meteorologicznych przeprowadzono analizę korelacji Pearsona oraz wykonano model regresji wielokrotnej. Z obu analiz wynika, że największy wpływ na zmienność stężenia aktywności Be-7 w powietrzu ma temperatura, wilgotność względna oraz zachmurzenie ogólne, przy czym korelacja z temperaturą jest dodatnia ($R=0,56$), natomiast korelacje z wilgotnością względną i zachmurzeniem są ujemne (odpowiednio $R=-0,63$, $R=-0,55$). Nie zanotowano znaczących korelacji stężenia aktywności Be-7 z innymi czynnikami meteorologicznymi. Próby zbadania zależności stężenia aktywności Be-7 od czynników meteorologicznych za pomocą modelu regresji wielokrotnej i korelacji Pearsona zostały podjęte przez wielu autorów [88,89,95]. Wszystkie z nich wskazują na dodatnią zależność stężenia aktywności Be-7 w powietrzu od temperatury, natomiast różnią się w otrzymanych wynikach zależności od innych czynników meteorologicznych. Dla przykładu badanie korelacji pomiędzy stężeniem aktywności Be-7 w powietrzu, a ilością opadów atmosferycznych przeprowadzone dla próbek zebranych na południowo zachodnim wybrzeżu Indii, wykazało bardzo silną ujemną korelację ($R=-0,81$) [95], co wskazuje na intensywne wymywanie Be-7 przez opady atmosferyczne. Zależności takiej nie zaobserwowano dla analizowanego w pracy zbioru danych. Być może, wynika to z faktu, że sezon deszczowy w Polsce przypada na okres wiosenny i letni (tabela 83), co pokrywa się z okresem, w którym obserwowane są najwyższe zawartości Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza. Ponadto w przeprowadzonej analizie uwzględniana jest suma całkowitego opadu atmosferycznego dla danego okresu próbkowania, bez podziału na depozycję suchą i mokrą. Być może efekt zmniejszenia stężenia aktywności Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza w wyniku wymycia przez opady atmosferyczne byłby widoczny gdyby częstotliwość pobierania próbek aerozoli atmosferycznych była dopasowana do częstotliwości występowania opadów atmosferycznych. Na podstawie dostępnych próbek, efekt przechodzenia Be-7 z powietrza do

opadów atmosferycznych, zbadano wykonując analizę korelacji opóźnionych szeregów czasowych stężenia aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych z szeregami czasowymi stężenia i depozycji aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Najwyższe współczynniki korelacji zaobserwowano dla szeregów czasowych nieprzesuniętych względem siebie w czasie oraz dla 1 miesięcznego opóźnienia szeregu czasowego zawartości Be-7 w opadzie, w stosunku do szeregu czasowego zawartości Be-7 w powietrzu (wykres 86). Wynik ten wskazuje, że zawartość Be-7 w całkowitym opadzie atmosferycznym w danym miesiącu zależy zarówno od zawartości Be-7 w przygruntowej warstwie powietrza w tym samym miesiącu, jak i w miesiącu poprzednim.

Drugim badaniem w pracy izotopem kosmogenicznym był Na-22. Biorąc pod uwagę wszystkie wyniki (zarówno poniżej jak i powyżej limitu detekcji) zaobserwowane stężenia aktywności wahały się od wartości $<MDC$ do $4 \mu Bq/m^3$ osiągając średnią wartość $0,7 \mu Bq/m^3$ oraz medianę $0,6 \mu Bq/m^3$ (tabela 26). Podobne wartości mediany uzyskano również w innych badaniach [72,96,97].

Nie zaobserwowano (charakterystycznego dla Be-7) statystycznie istotnego średniego wzrostu stężenia aktywności Na-22 w sezonie wiosennym i letnim (tabela 27), pomimo że liczba wyników powyżej limitu detekcji zarejestrowana w sezonie wiosennym i letnim była 4-krotnie wyższa niż liczba wyników powyżej limitu detekcji zarejestrowana w sezonie jesiennym i zimowym. Prawdopodobnie brak widocznej tendencji wzrostowej stężenia aktywności w sezonie wiosennym i letnim spowodowany był dużą liczbą wyników będących poniżej limitu detekcji (łącznie 75%) oraz wysokimi limitami detekcji, które wpłynęły na wartość średniej (analiza zależności limitu detekcji od warunków pomiaru omówiona w punkcie 4.1 rozdziału II). Pomimo braku widocznego wzrostu stężenia aktywności Na-22 w sezonie letnim i wiosennym, dodatnie korelacje wzajemne pomiędzy Na-22 i Be-7 zaobserwowane w tych sezonach (tabela 62, 63), wskazują na podobne procesy transportu obu izotopów kosmogenicznych w atmosferze

Prawdopodobnie duża liczba wyników będących poniżej limitu detekcji znacząco wpłynęła na wyniki innych analiz przeprowadzonych dla Na-22, tj brak zależności stężenia aktywności Na-22 od warunków meteorologicznych (tabela 84, 87) czy trudna w interpretacji zależność stężenia aktywności Na-22 w powietrzu od stężenia i depozycji aktywności w całkowitym opadzie atmosferycznym (wykres 87). Analizę struktury szeregu czasowego stężenia Na-22 w powietrzu, z uwagi na niespójność zbioru danych, przeprowadzono dla dwóch rozłącznych okresów: 2005-2006 oraz 2008-2016. Analiza Fouriera obu szeregów wskazuje na roczną zmienność stężenia aktywności Na-22 (wykresy 111, 112 oraz tabele 93, 94), przy czym dokładniejszy wynik otrzymano dla szeregu utworzonego z danych pochodzących z lat 2005-2006. Uzyskane trendy liniowe w obu szeregach wykazują inną charakterystykę niż szeregi stężenia aktywności Be-7, a tym samym inną niż wynikałoby z wpływu cyklu słonecznego. Taki wynik w przypadku szeregu dla okresu 2005-2006 może być skutkiem zbyt małego zbioru danych użytego do analizy, natomiast w przypadku szeregu 2008-2016 może wynikać z niespójności zbioru danych (zależność wyników pomiarowych od użytego detektora i konfiguracji mierzonych próbek). Z uwagi na bardzo niskie mierzone aktywności Na-22 w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych (4 rzędy wielkości niższe niż w przypadku Be-7), kluczowym jest zadbanie o jakość prowadzonych pomiarów spektrometrycznych. Chcąc prowadzić analizy dla kompletnego, długoletniego zbioru danych (tj. uwzględniając również wyniki o małej wartości), pomiary powinny być prowadzone przy pomocy detektorów o dużej wydajności, a poziom limitu detekcji dla całego zbioru (w idealnym przypadku) powinien być stały.

Kolejnym analizowanym w pracy izotopem promieniotwórczym był Pb-210, którego średnie stężenie aktywności wynosiło $0,56 \text{ mBq/m}^3$, przy zakresie zmienności wynoszącym $0,02 - 4,7 \text{ mBq/m}^3$. Uzyskane wyniki są zgodne z wynikami otrzymanymi w innych miejscach pomiaru takich jak, Monaco ($0,22-2,82 \text{ mBq/m}^3$) [88], południowo zachodnie wybrzeże półwyspu Iberyjskiego ($0,06-2,27 \text{ mBq/m}^3$) [99], Thessaloniki w Grecji ($0,01-1,98 \text{ mBq/m}^3$) [89], czy Detroit w USA ($0,3-4,2 \text{ mBq/m}^3$) [98]. W przeciwieństwie do Be-7, wyższe średnie stężenia aktywności Pb-210 zaobserwowano w sezonie jesiennym i zimowym, natomiast niższe w sezonie wiosennym i letnim. Sezonowa zmienność stężenia aktywności Pb-210 została również zbadana przy użyciu transformaty Fouriera, której wynikiem była obserwacja występowania rocznej okresowości (wykres 113, tabela 95). Prawdopodobnie niższe wartości stężenia aktywności Pb-210 w przygruntowej warstwie powietrza w sezonie wiosennym i letnim wynikają z występowania w tych sezonach obfitych opadów atmosferycznych (tabela 83), które powodują zwiększenie wilgotności gleby, a tym samym mniejszą emisję radonu do atmosfery (co skutkuje mniejszą produkcją Pb-210)[89]. Oprócz wilgotności gleby wpływ na zmniejszenie emanacji radonu do atmosfery ma zamarzanie gruntu związane z występowaniem na powierzchni Ziemi w okresie zimowym pokrywy śniegowej i lodowej. Jednocześnie w sezonie zimowym następuje wzrost stężenia aktywności Pb-210 w powietrzu w związku z niską emisją z palenisk domowych oraz w wyniku występowania zjawiska inwersji temperatury [102] (występującego w Krakowie przede wszystkim w sezonie zimowym [103]), którego efektem jest kumulacja zanieczyszczeń pyłowych w przygruntowej warstwie atmosfery.

Na podstawie dostępnego zbioru danych proces wymycia Pb-210 przez opady atmosferyczne został zbadany za pomocą analizy korelacji krzyżowych między stężeniem aktywności Pb-210 w powietrzu, a stężeniem i depozycją aktywności w całkowitym opadzie atmosferycznym. Z analizy korelogramów wynika, że najwyższy współczynnik korelacji występuje dla nieprzesuniętych w czasie szeregów stężenia aktywności Pb-210 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym. Brak korelacji stężenia aktywności Pb-210 w powietrzu z depozycją aktywności w całkowitym opadzie atmosferycznym, można wytłumaczyć inną zależnością obu wielkości od ilości opadów atmosferycznych: depozycja aktywności Pb-210 nieznacznie rośnie wraz z ilością opadów (zależność bezpośrednia) (tabela 88), natomiast stężenie aktywności Pb-210 w powietrzu nieznacznie maleje wraz ilością opadów (zależność pośrednia poprzez wzrost wilgotności gleby) (tabela 87).

Przeprowadzona analiza korelacji sezonowych między Be-7, a Pb-210 wskazuje na brak znaczącej zależności między stężeniem aktywności obu izotopów (najwyższy współczynnik korelacji $R=0,4$ zaobserwowano dla sezonu jesiennego). Niskie sezonowe korelacje wzajemne, prawdopodobnie wynikają z różnych źródeł emisji obu izotopów do atmosfery. Pb-210 produkowany jest w przyziemnej warstwie atmosfery, natomiast Be-7 powstaje w górnych warstwach atmosfery. Brak wysokiej sezonowej korelacji między rozważanymi izotopami, dla badanej lokalizacji geograficznej pozwala traktować je jako samodzielne markery procesów transportu mas powietrza w atmosferze. Przykładowo analiza stosunku Be-7/Pb-210 może wskazać czy pochodzenie badanych mas powietrza w większej mierze ma charakter kontynentalny (niski stosunek), czy stratosferyczny (wysoki stosunek) [99]. Dla badanej lokalizacji geograficznej uzyskane stosunki Be-7/Pb-210 osiągają wyższe wartości w sezonie wiosennym i letnim, a niższe w sezonie jesiennym i zimowym (tabela 27). Taką samą zależność uzyskano również w badaniach prowadzonych w Bratysławie [90], której klimat i położenie geograficzne są zbliżone do Krakowa. Dominacja Be-7 w podanym stosunku wiosną i latem

wskazuje na przewagę pionowego transportu mas powietrza w tych sezonach, natomiast niski stosunek w sezonie jesiennym i zimowym sugeruje większy wpływ poziomego transportu mas powietrza. Bardziej znaczący poziomy transport mas powietrza w sezonie zimowym wyraża się także przez najwyższą średnią prędkość wiatru zarejestrowaną w tym sezonie (tabela 83). Z kolei fakt, że najwyższa zaobserwowana wartość Pb-210 zarejestrowana została w sezonie jesiennym (w którym wartość wietrzności nie odbiega znacząco od innych sezonów), może świadczyć, że większy, niż poziomy transport mas powietrza, wpływ na wzrost stężenia Pb-210 w tym sezonie ma zmniejszenie intensywności pionowego mieszania się mas powietrza, które prowadzi do gromadzenia się radonu w przygruntowej warstwie powietrza [90].

Wpływ siły wiatru oraz innych czynników meteorologicznych na stężenie aktywności Pb-210 został zbadany poprzez analizę korelacji oraz model regresji wielokrotnej. Z przeprowadzonych analiz wynika, że największy wpływ spośród rozważanych wskaźników meteorologicznych na stężenie aktywności Pb-210 w przygruntowej warstwie powietrza ma siła wiatru wiejącego z kierunku NE ($R=0,42$) oraz W ($R=-0,35$). Dodatkowo zanotowano niską (ale istotną statystycznie) ujemną korelację z temperaturą powietrza ($R=-0,24$) oraz całkowitym opadem atmosferycznym ($R=-0,19$), a jednocześnie dodatnią korelację z wilgotnością powietrza ($R=0,21$) oraz z ciśnieniem atmosferycznym ($R=0,25$) (tabele 84 i 87). Ujemna korelacja stężenia aktywności Pb-210 z temperaturą powietrza oraz z sumą opadu atmosferycznego (których najwyższe wartości występują wiosną i latem), potwierdza zjawisko zmniejszenia zawartości Pb-210 w przygruntowej warstwie powietrza związane z intensywnym pionowym mieszaniem mas powietrza oraz ze wzrostem wilgotności gleby. Trudniejsza w interpretacji jest dodatnia korelacja z wilgotnością względną oraz ciśnieniem atmosferycznym (których najwyższe wartości zanotowano jesienią i zimą). Być może są one wynikiem podobnej sezonowej zmienności korelowanych wielkości. Z kolei dodatnią korelację z siłą wiatru z kierunku NE, można powiązać z polarno-kontynentalnymi masami powietrza, które napływają do Polski z odległych terenów Eurazji [100]. Tak jak wspomniano w rozdziale I w punkcie 6.4, ponad 99% Pb-210 emitowane jest do atmosfery z obszarów lądowych, a tylko niecały 1% z obszarów wodnych, w związku z czym izotop ten doskonale nadaje się do śledzenia transportu kontynentalnych mas powietrza. Zgodnie z tą zależnością, na podstawie ujemnej korelacji Pb-210 z siłą wiatru wiejącego z kierunku W, można byłoby przypuszczać że masy powietrza docierające z tego kierunku do Krakowa są w większej mierze pochodzenia morskiego niż kontynentalnego. Trudno jednak o jednoznaczną konkluzję, ponieważ efekt ujemnej korelacji z siłą wiatru z kierunku W zanotowano również dla pozostałych badanych izotopów (tabela 87). Z uwagi na to, że w Krakowie wiatry z tego kierunku są najczęstsze i najsilniejsze (rysunek 11, wykres 106), być może powodują one efekt tzw. „przewietrzania”, zmniejszając ilość pyłu w przygruntowej warstwie powietrza.

Następnym badanym w pracy izotopem pochodzenia ziemskiego w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych był K-40. Średnie zarejestrowane stężenie aktywności tego izotopu wynosiło $28 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ i zawierało się w zakresie od 4 do $97 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Badania zawartości tego izotopu w latach 2003-2006 wykazały nieco niższą średnią wynoszącą $20 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (zakres $3-41 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) [72]. Niższą średnią wartość wynoszącą $10 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ w latach 1998-2003 zaobserwowano również w Brunszwiku ($2,6-50 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) [101] oraz w Bratysławie ($0,1-13 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) [90]. Być może znaczące różnice w poziomie stężenia aktywności K-40 w mierzonych próbkach wynikają z położenia oraz lokalnych warunków panujących wokół stacji pomiarowej.

Tak jak w przypadku pozostałych badanych izotopów stężenie aktywności K-40 w przygruntowej warstwie powietrza wykazuje zmienność sezonową. Wyższe wartości

obserwowane są w sezonie jesiennym i zimowym, natomiast niższe w sezonie wiosennym i letnim (tabela 27). Zmienność sezonową w postaci rocznej okresowości pokazała też analiza Fouriera, której wynikiem oprócz sezonowości rocznej była również obserwacja trudnej do wyjaśnienia sezonowości wieloletniej (ok. 3 letniej) (tabela 92, wykres 110). Prawdopodobnie wzrost stężenia aktywności jesienią i zimą oprócz występowania procesów resuspensji (które w sezonie zimowym ulegają osłabieniu) wynika z bardziej intensywnego spalania paliw kopalnych oraz drewna (związanego z występowaniem okresu grzewczego) [72, 102]. Dodatkowym czynnikiem wpływającym na zwiększenie stężenia aktywności K-40 w miesiącach zimowych może być zjawisko inwersji temperatury. Na wzrost i utrzymywanie się zanieczyszczeń pyłowych w powietrzu w Krakowie wpływa też położenie topograficzne miasta oraz wysokie, związane z działalnością człowieka, emisje pyłów do atmosfery. Z kolei w sezonie wiosennym i letnim, na stężenie pyłu zawieszonego w powietrzu oprócz smogu wpływają też naturalne procesy pylenia roślin oraz wzmożona działalność agrarna (poprzez wykorzystywane na szeroką skalę bogate w potas nawozy sztuczne).

Zależność stężenia aktywności K-40 w przygruntowej warstwie powietrza od stężenia pyłu zawieszonego w powietrzu potwierdzona została na podstawie badania korelacji wzajemnych (punkt 4.8 rozdziału II). Z analizy korelacji wynika, że w każdym sezonie współczynnik korelacji jest wyższy niż $R=0,4$, osiągając najwyższą wartość latem ($R=0,69$), a najniższą zimą ($R=0,49$). Taka charakterystyka może wskazywać, że wiosną i latem, kiedy stężenie pyłu zawieszonego w powietrzu jest niższe, w większym stopniu kontroluje ono stężenie aktywności K-40. Pomimo, że zarówno stężenie pyłu zawieszonego w powietrzu, jak i stężenie aktywności K-40 osiągają najwyższe wartości w sezonie zimowym, współczynnik korelacji Spearmana dla tego sezonu jest najniższy. Możliwym wyjaśnieniem tego zjawiska wydaje się być różne pochodzenie K-40 w przygruntowej warstwie powietrza w zależności od badanego sezonu. W sezonie wiosennym i letnim (kiedy nie występuje sezon grzewczy) są to głównie procesy resuspensji, natomiast w sezonie jesiennym i zimowym istotnym źródłem staje się również spalanie paliw kopalnych. Przy założeniu, że w całym sezonie grzewczym proces spalania utrzymuje się na podobnym poziomie, przy jednoczesnym zwiększeniu ilości K-40 w przygruntowej warstwie atmosfery, może on zaburzyć korelację stężenia aktywności K-40 z całkowitym zapyleniem powietrza.

Badanie zależności stężenia aktywności K-40 od warunków meteorologicznych nie wskazało na żadne znaczące korelacje. Z analizy modelu regresji wielokrotnej wynika, że zmienność temperatury powietrza, zachmurzenia oraz siły wiatru wiejącego z kierunku W wyjaśniła w 9% zmienność stężenia aktywności K-40 w powietrzu. Chociaż korelacje z poszczególnymi wskaźnikami meteorologicznymi dla żadnego wskaźnika nie przekroczyły wartości $R=0,4$, to zmienność sezonowa stężenia aktywności K-40 uwidoczniła została poprzez znak współczynnika korelacji: ujemny dla korelacji z temperaturą powietrza i opadami oraz dodatni dla korelacji z zachmurzeniem i ciśnieniem powietrza. Najwyższy współczynnik korelacji z siłą wiatru zanotowany został dla kierunku W, który tak jak w przypadku Pb-210 był ujemny (tabela 87).

Kolejnym badanym w ramach rozprawy izotopem promieniotwórczym był antropogeniczny Cs-137. Zaobserwowany zakres zmienności stężenia aktywności tego izotopu wynosił od $0,14 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ do $225 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, przy czym wartość średniej, średniej odciętej i mediany wynosiły odpowiednio $2,01 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, $1,34 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ i $1,16 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Tak jak w przypadku K-40, kilkakrotnie niższe wartości średniej dla pomiarów prowadzonych w latach 1998-2003 otrzymano w Brunszwiku ($0,54 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) [101] oraz dla pomiarów prowadzonych w latach 2007-2010 w

Bratysławie ($0,3 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) [90]. Najwyższą wartość stężenia aktywności Cs-137 w przygruntowej warstwie powietrza w badanym zbiorze danych zmierzono w marcu 2011 roku w okresie bezpośrednio po awarii w elektrowni jądrowej w prefekturze Fukuszima. Innymi zarejestrowanymi w związku z tym wydarzeniem izotopami cezu były m.in. Cs-134 i Cs-136 [104]. Kolejnym okresem o znacząco podniesionych stężeniach aktywności Cs-137 był lipiec i sierpień 2015 roku. Najwyższe wartości w tamtym okresie wynoszące ok. $12 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, $7 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ i $6 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ zanotowano odpowiednio w 28 tygodniu (6.07.-13.07), 31 tygodniu (27.07-03.08) oraz w 34 tygodniu (17.08-24.08) (wykres 29). Z kolei pomiary stężenia aktywności Pu-239+240 wykazały znacząco podwyższoną wartość w okresie poboru od 10.08 do 07.09 (wykres 38) Jedynym zidentyfikowanym potencjalnym źródłem wzrostu stężenia aktywności obu rozważanych izotopów antropogenicznych w badanym okresie są pożary lasów, jakie wystąpiły 08.08.2015 i 09.08.2015 w okolicach elektrowni jądrowej w Czarnobylu [105]. Z drugiej strony stosunki izotopowe Cs-137/Pu-239+240 oraz Pu-238/Pu-239+240 dla próbek pochodzących z tego okresu nie wskazują na pochodzenie Pu-329+240 z wypalonego paliwa jądrowego (wykres 101). Dodatkowo zastanawiające jest maksimum stężenia aktywności Cs-137 przypadające na miesiąc przed datą zarejestrowania pożaru. Taka zmienność w czasie może oznaczać, że wzrost stężenia aktywności obu izotopów związany był ze wzmożonymi procesami resuspensji związanymi np. z okresem suszy poprzedzającym występowanie samoistnych pożarów. Na podstawie posiadanych danych pomiarowych trudno jednak wyciągnąć jednoznaczne wnioski. Aby wskazać najbardziej prawdopodobne źródła zaobserwowanych wzrostów należy wykonać bardziej dogłębną analizę, np. z użyciem trajektorii wstecznych, które umożliwiają śledzenie poziomego transportu mas powietrza [48,75].

Tak jak w przypadku pozostałych izotopów stężenie aktywności Cs-137 podlega sezonowym wahaniom uzyskując, podobnie jak Pb-210 i K-40, wyższe wartości w sezonie jesiennym i zimowym oraz niższe w sezonie wiosennym i letnim (tabela 27). Przeprowadzona analiza Fouriera również wykazała występowanie w szeregu czasowym zmienności rocznej (wykres 108, tabela 91). Poza okresowością w szeregu czasowym zidentyfikowano wieloletni ujemny trend liniowy. Dla okresu 2005-2010 (tj. przed awarią EJ w Fukuszimie) przewidywany roczny spadek stężenia aktywności wynikający z prawa rozpadu wyniósł 2,5%, natomiast spadek wyznaczony na podstawie dopasowanego trendu liniowego 2,9%.

Tak jak wspomniano w punkcie 6.2 rozdziału I, obecność Cs-137 w atmosferze jest wynikiem uwolnień, do których dochodzi podczas eksploatacji obiektów jądrowych, awarii obiektów jądrowych oraz testów z bronią jądrową. Obecnie najważniejszym źródłem Cs-137 w powietrzu jest globalny opad promieniotwórczy, a wzrost jego zawartości w powietrzu wynika głównie z zachodzących procesów resuspensji [38]. Z uwagi na podobne procesy transportu i podobne własności chemiczne cezu i potasu zmienność stężenia aktywności izotopów tych pierwiastków często rozpatruje się razem [102]. Wykonane analizy korelacji wzajemnej wykazały umiarkowaną korelację ($R \geq 0,4$) pomiędzy K-40 i Cs-137 w każdym rozpatrywanym sezonie, z czego najwyższy współczynnik korelacji został zaobserwowany dla sezonu letniego ($R=0,58$) (tabela 63). Tak jak w przypadku K-40, stężenie aktywności Cs-137 koreluje ze stężeniem pyłu zawieszonego w powietrzu, jednak inaczej niż w przypadku K-40, najwyższe współczynniki korelacji zanotowano dla sezonu jesiennego i zimowego (tabela 87). Dodatkowo w celu zbadania pochodzenia Cs-137 w przygruntowej warstwie powietrza dla każdego sezonu wyznaczono stosunek aktywności Cs-137/K-40. Uzyskane wartości dla zimy, wiosny, lata i jesieni wyniosły odpowiednio 0,06, 0,04, 0,04 i 0,05, co potwierdza, że głównym źródłem Cs-137 w przygruntowej warstwie powietrza są

procesy resuspensji (stosunek aktywności Cs-137/K-40 w glebie dla Polski waha się od 0,03 do 0,05 [39]). Z drugiej strony umiarkowana korelacja Cs-137 i Be-7 zaobserwowana w sezonie wiosennym ($R=0,4$), może wskazywać, że z uwagi na intensywne procesy pionowego transportu mas powietrza, w tym okresie dochodzi również do transportu Cs-137 z górnych warstw atmosfery.

Przeprowadzona analiza regresji wielokrotnej zależności stężenia aktywności Cs-137 od czynników meteorologicznych wykazała istotny statystycznie wpływ na stężenie aktywności Cs-137: temperatury powietrza, ciśnienia atmosferycznego, wilgotności względnej oraz siły wiatru z kierunków E, SW i NW (tabela 84), z których najbardziej istotnym czynnikiem, była temperatura powietrza (najwyższa wartość współczynnika ustandaryzowanego i jednocześnie najmniejszy błąd standardowy). Czynniki te w 25% wyjaśniły zmienność stężenia Cs-137 w przygruntowej warstwie powietrza w badanym zbiorze danych. Z kolei analiza korelacji Spearmana stężenia aktywności Cs-137 z warunkami meteorologicznymi, nie wskazała żadnych istotnych zależności (żaden współczynnik korelacji nie przekroczył wartości $R=0,4$ świadczącej o umiarkowanej korelacji) (tabela 87). Pomimo to, w pewnym stopniu, charakter zależności można ocenić na podstawie znaku wyznaczonego współczynnika korelacji. Podobnie jak w przypadku K-40, wskazuje on na ujemną zależność stężenia aktywności od temperatury ($R=-0,36$) oraz sumy opadu całkowitego ($R=-0,21$), a jednocześnie dodatnią zależność od ciśnienia atmosferycznego na poziomie morza ($R=0,22$).

Na podstawie dostępnych próbek, efekt wymycia Cs-137 z powietrza przez opady atmosferyczne, zbadano wykonując analizę korelacji opóźnionych szeregów czasowych stężenia aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych z szeregami czasowymi stężenia i depozycji aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Najwyższe współczynniki korelacji zaobserwowano dla szeregów czasowych nieprzesuniętych względem siebie w czasie oraz dla 1 miesięcznego opóźnienia szeregu czasowego zawartości Cs-137 w opadzie, w stosunku do szeregu czasowego zawartości Cs-137 w powietrzu (wykres 90). Wynik ten wskazuje, że zawartość Cs-137 (tak samo jak Be-7) w całkowitym opadzie atmosferycznym w danym miesiącu zależy zarówno od zawartości Cs-137 w przygruntowej warstwie powietrza w tym samym miesiącu, jak i w miesiącu poprzednim.

Kolejnymi analizowanymi w ramach rozprawy izotopami antropogenicznymi zawartymi w przygruntowej warstwie powietrza były Pu-238 oraz Pu-239+240. Zmierzone wartości stężenia aktywności rozważanych izotopów zawierały się w przedziałach od $1,03 \cdot 10^{-10} Bq/m^3$ do $1,31 \cdot 10^{-8} Bq/m^3$ ze średnią $2,07 \cdot 10^{-9} Bq/m^3$ dla Pu-239+240 i od $4,41 \cdot 10^{-11} Bq/m^3$ do $1,27 \cdot 10^{-9} Bq/m^3$ ze średnią $1,52 \cdot 10^{-10} Bq/m^3$ dla Pu-238. Podobne wartości zarejestrowane zostały w innych miejscach poboru próbek. Przykładowo w okresie pomiarowym 1990-1998 w Brunzowiku (średnie stężenie aktywności Pu-239+240 i Pu-238 w próbkach kwartalnych wyniosły odpowiednio $1,89 \cdot 10^{-9} Bq/m^3$ i $2,17 \cdot 10^{-10} Bq/m^3$) [106], w latach 2001-2002 w Sewilli (średnie stężenie aktywności Pu-239+240 w próbkach miesięcznych wyniosło $6,15 \cdot 10^{-9} Bq/m^3$) [107] oraz w latach 1997-2006 w Pradze (stężenie aktywności Pu-239+240 i Pu-238 w próbkach kwartalnych zawierało się w zakresie $0,53 - 5,06 \cdot 10^{-9} Bq/m^3$ oraz $< 0,16 - 1,10 \cdot 10^{-9} Bq/m^3$) [108]. Poprzednie badania prowadzone w latach 1990-2007 w Krakowie dla próbek kwartalnych wykazały średnią wartość stężenia aktywności Pu-239+240 i Pu-238 wynoszącą odpowiednio $4 \cdot 10^{-9} Bq/m^3$ oraz $2,4 \cdot 10^{-10} Bq/m^3$ [75].

Analiza zmienności stężenia aktywności Pu-239+240 w badanych próbkach wyraźnie pokazała, że zawartość Pu-239+240 w przygruntowej warstwie powietrza podlega wahaniom sezonowym, przy czym zmienność ta ma podobny charakter do zmienności stężenia aktywności Be-7, tj. ok. 2-krotnie wyższe stężenia obserwowane w sezonie wiosennym i letnim w stosunku do sezonu jesiennego i zimowego (tabela 37). Wynik analizy Fouriera szeregu czasowego stężenia aktywności Pu-239+240 w postaci rocznej okresowości również wskazuje, że stężenie aktywności Pu-239+240 podlega wahaniom sezonowym (wykres 115, tabela 97). Istotnie różnych średnich wartości sezonowych nie zanotowano z kolei dla Pu-238, którego stężenie aktywności, tak jak w przypadku Na-22, bardzo często znajdowało się poniżej limitu detekcji. Podobnie jak dla Na-22, zmienność sezonową stężenia aktywności Pu-238 można ocenić jedynie poprzez analizę liczby wyników będących powyżej limitu detekcji zarejestrowanych w poszczególnych sezonach. Wynika z niej, że w sezonie wiosennym i letnim zarejestrowano ok. 4 krotnie wyższą liczbę wyników powyżej limitu detekcji w porównaniu do sezonu jesiennego i zimowego. Wskazuje to na podobne mechanizmy transportu obu izotopów plutonu w atmosferze. Analiza Fouriera szeregu czasowego stężenia aktywności Pu-238 wskazała na istnienie dwóch okresowości: półrocznej i trzyletniej. Można przypuszczać, że brak spodziewanej okresowości rocznej również jest rezultatem znaczącej liczby wyników będących poniżej limitu detekcji. Prawdopodobnie wpłynęły one także na wynik analizy zależności stężenia aktywności Pu-238 od warunków meteorologicznych, która nie wykazała żadnych istotnych korelacji oraz żadnych istotnych statystycznie czynników w modelu regresji wielokrotnej. Z kolei badanie zależności stężenia aktywności Pu-239+240 od warunków meteorologicznych wykazało, że istotnymi statystycznie czynnikami w modelu regresji wielokrotnej były zachmurzenie ogólne oraz wilgotność względna, dla których odnotowano również najwyższe współczynniki korelacji (odpowiednio $R=-0,56$ oraz $R=-0,54$) (tabela 84 i 87). Ponadto stężenie aktywności Pu-239+240 dodatnio korelowało z temperaturą powietrza ($R=0,51$) oraz ujemnie z sumą opadów lodowych i śniegowych ($R=-0,45$). Znalezione zależności stężenia aktywności Pu-239+240 od wybranych wskaźników meteorologicznych mają bardzo zbliżony charakter do zależności zaobserwowanych dla Be-7. Badanie sezonowych korelacji wzajemnych między stężeniem aktywności Pu-239+240, a stężeniem aktywności Be-7 wykazało w sezonie zimowym podobną dynamikę zmian stężenia aktywności obu izotopów w czasie ($R=0,65$), oraz w mniejszym stopniu w sezonie jesiennym ($R=0,49$). Nie zaobserwowano znaczących korelacji w sezonie wiosennym i letnim. Z kolei w sezonie wiosennym zaobserwowano silną korelację z K-40 ($R=0,66$) i Pu-238 ($R=0,70$) oraz umiarkowaną z Cs-137 ($R=0,41$, $p=0,07$), natomiast w sezonie letnim umiarkowaną korelację z Cs-137 ($R=0,45$) oraz silną z Pb-210 ($R=0,70$). Wysoka korelacja między Pu-239+240 i Pb-210 nie znalazła jednak odzwierciedlenia na wykresie rozrzutu Pu-239+240 od Pb-210, na którym widać kilka punktów, które znacząco wpływają na charakter zależności. Wydaje się, więc że uzyskana wysoka korelacja między dwoma rozważanymi izotopami może być przypadkowa.

Analiza korelacji Pu-239+240 z Cs-137 oraz Be-7 jak również korelacji ze wskaźnikami meteorologicznymi wskazuje, że z jednej strony dynamika zmian stężenia aktywności Pu-239+240 w sezonie wiosennym i letnim w pewnym stopniu zbliżona jest do dynamiki zmian Cs-137, a z drugiej strony zależy od wybranych czynników meteorologicznych w taki sam sposób co Be-7 i tak samo jak Be-7 osiąga wyższe wartości w sezonie wiosennym i letnim, a niższe w sezonie jesiennym i zimowym. Z uwagi na złożoność procesów transportu aerozoli w atmosferze trudno jednak na podstawie przeprowadzonych analiz wyciągnąć jednoznaczne wnioski. Być może wpływ na stężenie aktywności Pu-239+240 w przygruntowej warstwie powietrza, oprócz procesów resuspensji, ma również składowa stratosferyczna. Świadczyłyby o tym wzrost

zawartości Pu-239+240 wiosną i latem, kiedy występują intensywne procesy pionowego transportu mas powietrza. Korelacja z Cs-137 i jednocześnie brak korelacji z Be-7 w tych sezonach sugerowałaby, podobne mechanizmy rządzące procesami transportu z górnych warstw atmosfery izotopów antropogenicznych oraz różne mechanizmy transportu izotopów kosmogenicznych. Z kolei korelacja Pu-239+240 z Be-7 i jednocześnie brak korelacji z Cs-137 zaobserwowane w sezonie jesiennym i zimowym prawdopodobnie wynikają, z faktu że w sezonie zimowym dominującym źródłem Cs-137 w przygruntowej warstwie powietrza jest spalanie drewna. Na inne źródła pochodzenia obu rozważanych izotopów antropogenicznych w tych sezonach, wskazuje również brak zależności stężenia aktywności Pu-239+240 od zapylenia powietrza (które zaobserwowano dla Cs-137).

Badanie wymywania Pu-239+240 z powietrza przez opady atmosferyczne przeprowadzone zostało przy pomocy analizy korelacji krzyżowych między stężeniem aktywności Pu-239+240 w przygruntowej warstwie powietrza, a stężeniem i depozycją aktywności w całkowitym opadzie atmosferycznym. Wykazała ona występowanie umiarkowanych ($R > 0,4$) korelacji dla opóźnień ujemnych, sugerujących rejestrację podwyższonego poziomu Pu-239+240 najpierw w całkowitym opadzie atmosferycznym, a dopiero później w przygruntowej warstwie powietrza. Tego typu zjawisko może być związane z procesem wymycia wraz z opadami izotopów plutonu z górnych warstw atmosfery i szybszym niż depozycja sucha, transportem na powierzchnię Ziemi. Opóźniona rejestracja obecności plutonu w przygruntowej warstwie powietrza może również wynikać z procesu resuspensji aerozoli plutonu, przetransportowanych na powierzchnię Ziemi przez opady atmosferyczne.

Kolejną analizą wykonaną dla szeregów czasowych stężenia aktywności Pu-238 i Pu-239+240 w przygruntowej warstwie powietrza było zbadanie źródeł ich pochodzenia w atmosferze, na podstawie stosunków aktywności Pu-238/Pu-239+240 oraz Cs-137/Pu-239+240. Z przeprowadzonej analizy wynika, że ze względu na wartość stosunku Pu-238/Pu-239+240 jedynie dwie próbki charakteryzują się jednoznacznie stosunkiem odpowiadającym wypalonemu paliwu jądrowemu: luty 2012 ($0,59 \pm 0,18$) i luty 2015 ($0,68 \pm 0,19$), natomiast pozostałe próbki wykazują mieszane pochodzenie, przy czym większy wkład niż wypalone paliwo jądrowe wydaje się mieć globalny opad promieniotwórczy. Wykresy zmienności w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 również sugerują mieszane źródła izotopów plutonu obecnych w próbkach aerozoli atmosferycznych, jednak większa (niż w przypadku stosunku Pu-238/Pu-239+240) liczba próbek wskazuje na wypalone paliwo jądrowe (pochodzące np. z awarii EJ w Czarnobylu). Taka charakterystyka może wskazywać na różne źródła pochodzenia Pu-239+240 i Pu-238 w badanych próbkach. Najwyższe wartości stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 (wynoszące ponad 4000) zanotowano dla próbek zebranych w styczniu i lutym 2010, grudniu 2010 i grudniu 2016. W granicach niepewności pomiarowej, zarówno w przypadku stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 jak i Pu-238/Pu-239+240, dla wszystkich zbadanych próbek stosunek aktywności był wyższy bądź równy wartości charakterystycznej dla globalnego opadu promieniotwórczego.

Wyniki oszacowania dawek pochodzących od ekspozycji zewnętrznej i wewnętrznej na promieniowanie jonizujące emitowane przez wybrane izotopy zawarte w powietrzu

W ramach tej analizy podjęto próbę oszacowania dawki równoważnej pochodzącej od ekspozycji zewnętrznej na promieniowanie jonizujące emitowane przez izotopy gamma

promieniotwórcze K-40, Pb-210, Cs-137, Na-22 i Be-7 oraz efektywnej dawki obciążającej dla różnych grup wiekowych pochodzącej od inhalacji izotopów alfa i gamma promieniotwórczych.

Wyznaczona roczna dawka równoważna wyniosła 0,9 nSv, tj. ok. milion razy mniej niż średnia światowa dawka efektywna pochodząca od naturalnego tła promieniotwórczego (2,4 mSv) [25]. Z kolei uzyskana efektywna roczna dawka obciążająca wynikająca z inhalacji aerozoli promieniotwórczych była rzędu μSv . Z przeprowadzonej analizy wynika, że wyznaczona ałkowita obciążająca dawka skuteczna pochodzi głównie od inhalacji Pb-210 (wpływ pozostałych rozważanych izotopów jest pomijalnie mały), w związku, z czym zmienność w czasie poziomu sumarycznej dawki obciążającej jest zdeterminowana przez dynamikę zmian stężenia aktywności Pb-210 w powietrzu.

Wyniki analizy dynamiki zmian stężenia oraz depozycji aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Dyskusja i wnioski.

W ramach pracy doktorskiej uzyskano wyniki pomiarowe stężenia oraz depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych: Na-22, Be-7, Cs-137, K-40 i Pb-210 zawartych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego zebranych w latach 2005-2016 oraz izotopów alfa promieniotwórczych Pu-238 oraz Pu-239+240 zawartych w próbkach zebranych w latach 2010-2016. Dla otrzymanego zbioru danych wyznaczono następnie wybrane elementy statystyki opisowej, której wyniki zamieszczono w tabelach 20 i 21.

Analiza zawartości Be-7 w badanych próbkach wykazała, że średnie miesięczne stężenie aktywności w całkowitym opadzie atmosferycznym wynosi $1605 \text{ Bq}/\text{m}^3$ (przy zakresie $273\text{-}3900 \text{ Bq}/\text{m}^3$), natomiast średnia miesięczna depozycja aktywności wynosi $96 \text{ Bq}/\text{m}^2$ (przy zakresie $2,6\text{-}406 \text{ Bq}/\text{m}^2$). Podobne zakresy wartości uzyskano również w innych miejscach pomiaru, takich jak Malaga ($2\text{-}1284 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{miesiąc})$)[109], Thessaloniki ($477\text{-}113 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{rok})$)[110], Onagawa w Japonii ($26\text{-}486 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{miesiąc})$)[111], Nowy Jork ($67\text{-}395 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{miesiąc})$) oraz $1300\text{-}4600 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{miesiąc})$ [112] oraz Monaco ($2\text{-}660 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{miesiąc})$) oraz $400\text{-}8600 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{miesiąc})$)[113]. Zarówno zmienność stężenia jak i depozycji aktywności Be-7 w badanych próbkach wykazała wahania sezonowe, przy czym wyższe wartości (ok. 2-3 krotnie) występowały w sezonie wiosennym i letnim, natomiast niższe w sezonie jesiennym i zimowym (tabela 22,23). Sezonowość w postaci rocznej okresowości była również wynikiem przeprowadzonej analizy Fouriera (wykresy 116,117, tabele 98,99).

Analiza zależności stężenia i depozycji aktywności Be-7 od warunków meteorologicznych wykazała, że w modelu regresji wielokrotnej depozycja aktywności głównie kontrolowana jest przez sumę opadu całkowitego (przy czym współczynnik korelacji wzajemnej wynosi $R=0,79$), natomiast stężenie aktywności przez wilgotność względną (przy czym współczynnik korelacji wzajemnej wynosi $R=-0,47$) (tabele 85,86). Analiza korelacji wzajemnych depozycji aktywności z warunkami meteorologicznymi wykazała dodatkowo umiarkowaną zależność od temperatury ($R=0,57$), oraz silną zależność od sumy opadów ciekłych ($R=0,81$) (tabela 88). W przypadku stężenia aktywności również zaobserwowano dodatnią korelację z temperaturą ($R=0,55$), sumą opadu całkowitego ($R=0,4$) oraz sumą opadów ciekłych ($R=0,44$) (tabela 89). Zarówno w przypadku depozycji jak i stężenia aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego zanotowano wyższą korelację z sumą opadów ciekłych niż z sumą opadu całkowitego oraz brak istotnej statystycznie korelacji z sumą opadów śniegowych i lodowych.

Wynik ten wskazuje, że proces wymycia Be-7 z atmosfery, następuje w wyniku występowania ciekłych opadów atmosferycznych (tj. deszcz, mżawka), nie zależy natomiast od występowania opadów śniegowych i lodowych (tj. śnieg, grad, krupy lodowe, deszcz ze śniegiem).

Drugim analizowanym w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego izotopem kosmogenicznym był Na-22. Stężenie aktywności tego izotopu wahało się od 0,1 do 2 Bq/m^3 osiągając średnią wartość 0,5 Bq/m^3 , natomiast depozycja aktywności wahała się od wartości <MDC do 0,06 Bq/m^2 osiągając średnią wartość 0,02 Bq/m^2 . Z uwagi na brak danych literaturowych nie udało się porównać otrzymanych wyników z innymi lokalizacjami pomiarowymi.

Tak jak w przypadku Be-7, wyższe wartości depozycji aktywności Na-22 zarejestrowano w sezonie wiosennym i letnim, natomiast niższe w sezonie jesiennym i zimowym (tabela 22). Podobnie jak w przypadku aerozoli atmosferycznych, efekt ten nie został jednak zaobserwowany dla stężenia aktywności, co prawdopodobnie wpłynęło również na brak znaczących sezonowych korelacji wzajemnych między stężeniem aktywności obu izotopów. W przypadku depozycji aktywności najwyższe współczynniki korelacji wzajemnych rozważanych izotopów kosmogenicznych zaobserwowano w sezonie wiosennym ($R=0,86$) i letnim ($R=0,40$), co jest wynikiem złożenia dwóch zjawisk: wzrostu zawartości izotopów kosmogenicznych w przygruntowej warstwie powietrza w sezonie wiosennym i letnim (w związku z intensywnym pionowym mieszaniem mas powietrza) oraz wzrostu ilości ciekłych opadów atmosferycznych w tych sezonach.

Analiza Fouriera szeregów czasowych stężenia i depozycji aktywności Na-22 również nie dała jednoznacznych rezultatów. Wydaje się, że zaobserwowane dwie okresowości (ok. 2/3 roku i ok. 2 lata) oraz brak spodziewanej obserwacji okresowości rocznej w szeregu czasowym stężenia aktywności Na-22 mogą wynikać z dużej liczby wyników będących poniżej limitu detekcji. Roczna okresowość wyraźniej zaobserwowana została w szeregu czasowym depozycji aktywności, w którym znaleziono dodatkowo trudną w interpretacji okresowość 3 letnią.

Analiza zależności stężenia i depozycji aktywności Na-22 od wybranych wskaźników meteorologicznych wykazała, że w modelu regresji wielokrotnej zmienność zarówno depozycji jak i stężenia aktywności głównie wyjaśniona jest przez sumę opadu całkowitego (wyjaśnienie odpowiednio 47% i 8% zmienności), przy czym w przypadku depozycji aktywności zależność ta jest dodatnia ($R=0,58$), natomiast w przypadku stężenia aktywności jest ujemna ($R=-0,27$). Analiza korelacji wzajemnych wykazała dodatkowo dodatnią umiarkowaną korelację między depozycją aktywności, a temperaturą powietrza ($R=0,42$). Podobny charakter uzyskanych zależności depozycji aktywności obu izotopów kosmogenicznych od opadów atmosferycznych świadczy o podobnych mechanizmach wymywania tych izotopów z atmosfery.

Kolejnym analizowanym izotopem w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego był Pb-210. Średnie miesięczne stężenie aktywności tego izotopu wyniosło 231 Bq/m^3 (po odrzuceniu jednej obserwacji odległej), natomiast średnia miesięczna depozycja aktywności wyniosła 11 Bq/m^2 (tabela 20 i 21). Zawartość Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego badana była również w innych lokalizacjach geograficznych takich jak Malaga (gdzie średnia depozycja aktywności wyniosła 12 $Bq/(m^2miesiąc)$ na podstawie [109], Szwajcaria (gdzie średnia depozycja aktywności wyniosła 12,5 $Bq/(m^2miesiąc)$ na podstawie [114], Nowy Jork (gdzie średnia depozycja aktywności wyniosła 12,2 $Bq/(m^2miesiąc)$ na podstawie [111], Monaco

(gdzie zakres stężenia i depozycji aktywności wynosił odpowiednio 220-1900 $Bq/(m^2miesiąc)$ oraz 0,3-109 $Bq/(m^2miesiąc)$)[112].

Zarówno stężenie jak i depozycja aktywności Pb-210 w całkowitym opadzie atmosferycznym wykazała zmienność sezonową, przy czym w przypadku depozycji aktywności wyższe wartości obserwowano w sezonie wiosennym i letnim (podobnie jak dla izotopów kosmogenicznych), natomiast w przypadku stężenia aktywności wyższe wartości obserwowano w sezonie jesiennym i zimowym (przeciwnie do izotopów kosmogenicznych). Charakter otrzymanej zmienności wynika z jednej strony z wyższych stężeń aktywności Pb-210 w przygruntowej warstwie powietrza w sezonie jesiennym i zimowym (co skutkuje w tych sezonach wyższym stężeniem aktywności w opadach) oraz z drugiej strony z bardziej intensywnych opadów atmosferycznych rejestrowanych w sezonie wiosennym i letnim (co wpływa na wzrost rejestrowanej w całkowitym opadzie atmosferycznym depozycji aktywności). Ciekawym i jednocześnie trudnym do wyjaśnienia wynikiem badania sezonowości było zaobserwowanie za pomocą transformaty Fouriera ok. 3 letniej okresowości zarówno w szeregach czasowych stężenia jak i depozycji aktywności Pb-210 (wykresy 124,125, tabele 106,107).

Analiza zależności depozycji aktywności Pb-210 od warunków meteorologicznych wykazała że jedynymi istotnymi statystycznie czynnikami meteorologicznymi wpływającymi na wielkość depozycji są suma opadu całkowitego ($R=0,27$) oraz suma opadów ciekłych ($R=0,24$). W przypadku stężenia aktywności, wykazano zależność od sumy opadu atmosferycznego ($R=-0,29$), sumy opadów ciekłych ($R=-0,31$), temperatury powietrza ($R=-0,25$), oraz siły wiatru z kierunków NE ($R=0,22$), W ($R=-0,24$) i NW ($R=-0,21$). Z wymienionych czynników tylko temperatura powietrza oraz siła wiatru z kierunku W uznane zostały za istotne statystycznie współczynniki w modelu regresji wielokrotnej, i pozwoliły wyjaśnić 12% zmienności stężenia aktywności Pb-210.

Analiza korelacji wzajemnych między stężeniem aktywności Pb-210 i Be-7, wykazała podobnie jak w przypadku aerozoli atmosferycznych, brak znaczących korelacji sezonowych (najwyższy współczynnik korelacji wyniósł $R=0,49$ w sezonie zimowym, w pozostałych sezonach współczynnik nie przekroczył wartości $R=0,38$). Wyższe współczynniki korelacji uzyskano z analizy korelacji wzajemnych między depozycją aktywności obu izotopów, tj. $R=0,55$ w sezonie wiosennym i letnim, $R=0,73$ w sezonie jesiennym i $R=0,39$ w sezonie zimowym. Uzyskane wyniki sugerują, że pomimo iż źródła obecności w atmosferze obu izotopów są różne (i różna jest też dynamika zmian ich stężenia aktywności), to mechanizm wymywania przez opady atmosferyczne jest zbliżony. Podobne wnioski uzyskano również w innych pracach [108,113]. Najwyższy współczynnik korelacji depozycji aktywności rozważanych izotopów zaobserwowany w sezonie jesiennym, prawdopodobnie związany jest ze stabilnymi warunkami meteorologicznymi występującymi w tym sezonie tj. mało intensywnymi procesami pionowego i poziomego transportu mas powietrza.

Kolejnym izotopem będącym przedmiotem badań w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego był K-40. Uzyskane średnie miesięczne stężenie aktywności tego izotopu wyniosło 26 Bq/m^3 (po odrzuceniu jednej obserwacji odległej), natomiast średnia miesięczna depozycja aktywności wyniosła 1 Bq/m^2 . Poza Krakowem badania zawartości K-40 w opadach atmosferycznych prowadzono również w Maladze (gdzie średnie stężenie aktywności wyniosło 6 $Bq/(m^2miesiąc)$) na podstawie [108]. W przeciwieństwie do poprzednio omówionych izotopów (tj. Be-7, Na-22 i Pb-210) depozycja aktywności K-40 nie wykazała wyraźnej zmienności sezonowej: jedynie w sezonie zimowym zaobserwowano znacząco niższe wartości (ok. 2-krotnie

niższe niż w pozostałych sezonach). Z kolei stężenie aktywności K-40 nie wykazało zmienności zaobserwowanej dla stężenia aktywności w aerozolach atmosferycznych (uzyskując najwyższe wartości w sezonie jesiennym, a najniższe w sezonie zimowym). Badanie zmienności sezonowej przy pomocy transformaty Fouriera również nie przyniosło jednoznacznych rezultatów. W przypadku stężenia aktywności zaobserwowano okresowość roczną i półroczną, natomiast w przypadku depozycji aktywności okresowość kwartalną, półroczną i wynoszącą ok. 2/3 roku. Analizując widmo amplitudy sygnału depozycji aktywności w dziedzinie częstotliwości (wykres 120) można jednak zauważyć, że znacząco spośród tła wyróżnia się tylko częstotliwość odpowiadająca okresowi półrocznemu. Oprócz sezonowości w szeregach czasowych stężenia i depozycji aktywności zaobserwowano również występowanie dodatniego trendu liniowego, którego źródła nie udało się jednak zidentyfikować.

Analiza zależności stężenia aktywności K-40 od warunków meteorologicznych nie wskazała żadnych istotnych korelacji. Z analizy korelacji wzajemnych można jedynie zauważyć, że spośród wszystkich rozważanych izotopów, depozycja aktywności K-40 najslabiej koreluje z sumą ciekłych opadów atmosferycznych, co sugeruje brak istotnego wpływu ilości ciekłych opadów na proces wymywania K-40 z atmosfery (w przeciwieństwie do izotopów kosmogenicznych).

Następnym badanym izotopem w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego był Cs-137. Stężenie aktywności tego izotopu wahało się od 0,08 do 6,87 Bq/m^3 osiągając średnią wartość 0,7 Bq/m^3 (po odrzuceniu obserwacji odległej), natomiast depozycja aktywności wahała się od 0,005 do 0,28 Bq/m^2 osiągając średnią wartość 0,04 Bq/m^2 . Wieloletnia dynamika zmian aktywności Cs-137 w całkowitym opadzie atmosferycznym badana była również w Thessalonikach (gdzie roczna depozycja aktywności wahała się od 135,5 Bq/m^2 w 1987 roku do 12,3 Bq/m^2 w 1992 roku)[109] oraz na Kubie (gdzie średnia roczna depozycja aktywności w latach 1994-2002 wyniosła 0,24 Bq/m^2)[115]. Podobnie jak w przypadku Pb-210, Be-7 i Na-22 najwyższe wartości depozycji aktywności Cs-137 zaobserwowane zostały w sezonie wiosennym i letnim. Z kolei stężenie aktywności nie wykazało sezonowości charakterystycznej dla aerozoli atmosferycznych (osiągając najwyższe wartości zimą, a najniższe jesienią). Analiza Fouriera szeregów czasowych stężenia i depozycji aktywności wykazała w obu szeregach występowanie (w przybliżeniu) okresowości rocznej i półrocznej.

Analiza zależności stężenia i depozycji aktywności Cs-137 od warunków meteorologicznych nie wykazała, żadnych znaczących korelacji. Można jedynie zauważyć, że charakter korelacji depozycji i stężenia aktywności z sumą całkowitego opadu atmosferycznego i z sumą opadów ciekłych jest odwrotny: podczas gdy depozycja aktywności Cs-137 koreluje dodatnio z opadami, stężenie aktywności koreluje ujemnie (tabela 88 i 89). Taki sam wynik uzyskano również dla izotopów pochodzenia ziemskiego Pb-210 i K-40.

Średni stosunek aktywności Cs-137/K-40 w całkowitym opadzie atmosferycznym wynoszący 0,04 wskazuje, tak jak w przypadku próbek filtrów powietrza, że źródłem obu izotopów w atmosferze są głównie procesy resuspensji.

Kolejnymi izotopami antropogenicznymi badanymi w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego były Pu-238 i Pu-239+240. Możliwość długookresowej analizy dynamiki zmian aktywności obu izotopów alfa promieniotwórczych została znacznie ograniczona w wyniku kontaminacji laboratorium radiochemicznego izotopami plutonu, które wystąpiło na przełomie 2013/2014. Po odrzuceniu obserwacji odległych związanych z wystąpieniem kontaminacji

średnie stężenie i depozycja aktywności Pu-239+240 wyniosły odpowiednio 5 mBq/m^3 i $0,24 \text{ mBq/m}^2$, natomiast stężenie i depozycja aktywności Pu-238 wyniosły odpowiednio $0,5 \text{ Bq/m}^3$ i $0,02 \text{ Bq/m}^2$. Podobne wyniki otrzymano w badaniach poprzednio prowadzonych w Krakowie w latach 2005-2007 (depozycja aktywności Pu-239+240 i Pu-238 wyniosła odpowiednio $0,30$ i $0,07 \text{ Bq/m}^2$). Podobnie jak dla pozostałych badanych izotopów (oprócz K-40) wyższe wartości depozycji aktywności zaobserwowano w sezonie wiosennym i letnim, natomiast niższe w sezonie jesiennym i zimowym. Z kolei w przypadku stężenia aktywności nie zaobserwowano zmienności sezonowej charakterystycznej dla aerozoli atmosferycznych. Ciekawe rezultaty przyniosło badanie zmienności sezonowej przy pomocy transformaty Fouriera. W szeregach czasowych przygotowanych dla okresu 01.2010-07.2013 zaobserwowano podobną okresowość dla obu izotopów plutonu: w przypadku depozycji aktywności była to okresowość roczna, natomiast w przypadku stężenia aktywności okresowość półroczna (wykresy 126-129, tabele 108-111).

Analiza korelacji wzajemnych między Pu-239+240, a izotopami gamma promieniotwórczymi wykazała najwyższe korelacje Pu-239+240 z Cs-137 i K-40, przy czym w przypadku stężenia aktywności najwyższe korelacje zaobserwowano w sezonie wiosennym, natomiast w przypadku depozycji aktywności w sezonie jesiennym. Dodatkowo w sezonie jesiennym zaobserwowano dodatnią korelację depozycji aktywności Pu-239+240 z depozycją aktywności Be-7 ($R=0,43$). Wyższe korelacje depozycji aktywności występujące w sezonie jesiennym (kiedy opady ciekłe są mniej intensywne) i jednocześnie brak znaczących korelacji w sezonie wiosennym i letnim (kiedy suma opadów ciekłych jest najwyższa) wskazują na inny wpływ ilości opadów ciekłych na proces wymywania rozważanych izotopów z atmosfery. Aby móc jednak wyciągnąć bardziej jednoznaczne wnioski, w analizie oprócz sumy ciekłych opadów atmosferycznych należałoby uwzględnić również czas występowania opadów ciekłych oraz ich intensywność.

Tak jak w przypadku próbek aerozoli atmosferycznych, w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego również podjęto próbę wskazania źródeł pochodzenia izotopów plutonu. Z analizy wykresów 94-96 przedstawiających zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 wynika, że dla większości próbek źródło pochodzenia izotopów plutonu jest mieszane. Najwyższym stosunkiem świadczącym o pochodzeniu z wypalonego paliwa jądrowego (w szczególności np. z miejsc o wysokim opadzie czarnobylskim) charakteryzują się próbki z czerwca ($0,59 \pm 0,09$) i lipca ($0,52 \pm 0,14$) 2010, natomiast najniższy stosunek został zaobserwowany dla próbki zebranej w lipcu 2015 ($0,037 \pm 0,019$). Uwzględniając niepewności pomiarowe, w każdej badanej próbce stosunek aktywności izotopów plutonu był wyższy bądź równy wartości charakterystycznej dla opadu globalnego (tabela 9). Również stosunki aktywności Cs-137/Pu-239+240 wskazują na mieszane pochodzenie izotopów plutonu. Wartość stosunku charakterystyczną dla awarii EJ w Czarnobylu przedstawia jedynie próbka zebrana w lutym 2013 roku (1643 ± 516). Z kolei najniższą wartość stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 zaobserwowano dla próbki zebranej w czerwcu 2014 (37 ± 11). Wynik ten, uwzględniając niepewność pomiarową, świadczy o pochodzeniu plutonu z globalnego opadu atmosferycznego (tabela 9).

Podsumowanie

Celem rozprawy doktorskiej było zbadanie dynamiki zmian stężenia i depozycji aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych w atmosferze (Be-7, Na-22, K-40, Pb-210, Cs-137, Pu-238 oraz Pu-239+240) na podstawie 12-letniego zestawu próbek aerozoli atmosferycznych z przyziemnej warstwy powietrza oraz próbek całkowitego opadu atmosferycznego zebranych w IFJ PAN w Krakowie. Ze względu na źródła emisji do atmosfery, izotopy te reprezentują wszystkie najważniejsze grupy (tj. izotopy kosmogeniczne, ziemskie oraz antropogeniczne) i w związku z tym mogą być wykorzystywane jako markery różnorodnych procesów transportu aerozoli w atmosferze.

Z uwagi na bardzo duży i różnorodny zestaw danych pomiarowych (ok. 1000 pomiarów, z których otrzymano ok. 3800 wyników pomiarowych) wszystkie analizy wykonano w oparciu o model eksploracji danych CRISP-DM. Potraktowanie analizy danych jako procesu, a nie jako zbioru niezależnych metod zmniejszyło prawdopodobieństwo uzyskania błędnych wyników i w związku z tym wyciągnięcia fałszywych wniosków. W badaniach prowadzonych w ramach niniejszej pracy zastosowanie kompleksowego, usystematyzowanego podejścia umożliwiło analizę otrzymanego zbioru danych, który jak każdy zbiór danych rzeczywistych, zawierał pewne braki, błędy i niespójności.

W ramach niniejszej pracy zgromadzono i opracowano łącznie ok. 1000 widm emisyjnych promieniowania gamma i alfa. W tym dla 170 próbek przeprowadzono procedurę radiochemicznego wydzielenia izotopów plutonu w celu przygotowania ich do pomiarów z użyciem spektrometrii promieniowania alfa. Na podstawie przeprowadzonych pomiarów uzyskano wyniki stężenia aktywności rozważanych izotopów w próbkach aerozoli atmosferycznych oraz wyniki stężenia i depozycji aktywności tych izotopów w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego. Następnie w celu przygotowania danych do dalszych analiz zgodnie z wybranym algorytmem oszacowano wartości dla wyników będących poniżej limitu detekcji. Dla tak przygotowanych danych wyznaczono wybrane elementy statystyki opisowej. Następnie przeanalizowano otrzymany zbiór danych pod kątem braków, niespójności i błędów grubych przeprowadzając m.in. analizę obserwacji odległych oraz analizę zależności wyników pomiarowych od rodzaju detektora oraz konfiguracji mierzonych próbek (analiza wykonana dla wyników gamma spektrometrycznych tygodniowych próbek aerozoli atmosferycznych). W tym samym etapie, po zrozumieniu otrzymanego zbioru danych zidentyfikowano ograniczenia, jakimi oprócz problemów technicznych było: pochodzenie danych tylko z jednego punktu pomiarowego, długie okresy próbkowania oraz inna rozdzielczość czasowa poboru próbek aerozoli i opadu całkowitego. Następnie na zbiorze danych wykonano proces czyszczenia z błędów grubych, uzupełnienia braków oraz przygotowania danych w różnych rozdzielczościach czasowych, tak by otrzymać kompletne szeregi czasowe zmienności stężenia i depozycji aktywności rozważanych izotopów. Biorąc pod uwagę zidentyfikowane ograniczenia oraz możliwości zrealizowano następujące cele badawcze:

- ✓ Wyznaczono zawartości izotopów ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K w badanych próbkach
- ✓ Zbadano korelacje wzajemne pomiędzy stężeniem i depozycją aktywności rozważanych izotopów w badanych próbkach
- ✓ Zbadano zależności stężenia aktywności rozważanych izotopów zawartych w przygruntowej warstwie powietrza od stężenia pyłu zawieszonego w powietrzu

- ✓ Zbadano zależności pomiędzy zawartością rozważanych izotopów w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym
- ✓ Zbadano źródła izotopów plutonu w badanych próbkach
- ✓ Zbadano strukturę szeregów czasowych stężenia i depozycji aktywności rozważanych izotopów w badanych próbkach
- ✓ Oszacowano dawki pochodzące od ekspozycji zewnętrznej i wewnętrznej na promieniowanie jonizujące emitowane przez rozważane izotopy promieniotwórcze zawarte w przygruntowej warstwie powietrza

Badania przeprowadzone w ramach tej pracy pozwoliły na analizę dynamiki zmian stężenia i depozycji aktywności izotopów ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K w przygruntowej warstwie powietrza oraz w całkowitym opadzie atmosferycznym. Kompleksowe zbadanie wzajemnych korelacji między rozważanymi izotopami wraz z analizą zależności od wybranych wskaźników meteorologicznych było podstawą do wskazania źródeł pochodzenia tych izotopów w mierzonych próbkach oraz oceny ich możliwego wykorzystania jako wskaźników procesów transportu aerozoli w atmosferze. Autorka pracy wyraża nadzieję, że uzyskany długoletni zestaw danych pomiarowych zarówno w powietrzu jak i w całkowitym opadzie atmosferycznym wraz z wynikami przeprowadzonych analiz może stanowić cenny wkład w badania radioaktywności atmosfery w tej części Europy.

IV. Bibliografia

1. Strzałkowski A. (1969), „Wstęp do fizyki jądra atomowego”, PWN, Warszawa
2. Attix F.H. (1979) „Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry”, John Wiley&Sons, New York
3. Dziunikowski B., Kalita S. (1995) „Ćwiczenia pomiarowe z jądrowych metod pomiarowych”, Wydawnictwa AGH, Kraków
4. Matwood D.A. (2010), „Radionuclides in the environment”, Wiley, United Kingdom
5. Dziunikowski B. (2001) „O fizyce i energii jądrowej”, Uczelniane Wydawnictwa Naukowo-Dydaktyczne AGH, Kraków
6. Hryniewicz A. Z. (2001) „Człowiek i promieniowanie jonizujące”, Wydawnictwo naukowe PWN, Warszawa
7. Sobkowski J. (2009) „Chemia radiacyjna i ochrona radiologiczna”, adamantan, Warszawa
8. Knoll G. F. (2011) „Radiation Detection and Measurement, third edition”, John Wiley & Sons, Inc.
9. Stolaki, S., Haeffelin, M., Lac, C., Dupont, J.-C., Elias, T., and Masson, V. (2015), „Influence of aerosols on the life cycle of a radiation fog event. A 30 numerical and observational study”, Atmospheric Research, 151, 146–161
10. Hu Q. et al. (2007), „Anthropogenic radionuclides in the environment”, Journal of Environmental Radioactivity
11. Choppin G. R. (2002), „Radiochemistry and nuclear chemistry”, Butterworth-Heinemann
12. Dziunikowski B. (1995) „Zastosowania izotopów promieniotwórczych część II”, Wydawnictwa AGH, Kraków
13. Gaggeler H. G. (1995), „Radioactivity in the atmosphere”, Radiochemica Acta 70/71, 345-353
14. UNSCEAR 2008 (2008), „ SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION”, UNITED NATIONS, New York
15. Wojewódzka M., Kruszewski M., Szumiel I. (1997), Effect of signal transduction inhibition in adapted lymphocytes: micronuclei frequency and DNA repair, „International Journal of Radiation Biology”, Volume 71, Pages 245-252
16. Dobrzyński, Ludwik. (2006), „Hormeza zjawisko powszechne i powszechnie nieznanne.” Postępy Techniki Jądrowej 49, 9-15
17. Mothersill C. et. al. (2007) „Multiple Stressors: A Challenge for the Future”, Springer, The Netherlands
18. Rozporządzenie Rady Ministrów z dnia 18 stycznia 2005 r. w sprawie dawek granicznych promieniowania jonizującego (Dz. U. Nr 20, poz. 168)
19. Ustawa z dnia 29 listopada 2000 r. Prawo atomowe. (Dz. U. z dnia 18 stycznia 2001 r.)
20. Moroz Z. et al. (2002), „ Analiza radioaktywności atmosferycznej ⁷-Be za pomocą sieci neuronowych”, „TECHNIKA JĄDROWA W PRZEMYSŁE, MEDYCYNIE, ROLNICTWIE I OCHRONIE ŚRODOWISKA T.2”, Instytut Chemii i Techniki Jądrowej, Warszawa
21. Salbu B. et al. (2004), „Radionuclide speciation and its relevance in environmental impact assessments”, Journal of Environmental Radioactivity V.74, Issues 1–3, 233-242
22. Bou-Rabee F. et al. (), „Technologically enhanced naturally occurring radioactive materials in the oil industry (TENORM). A review”, NUKLEONIKA 54(1), 3–9

23. Baird R.D. et al. (1990), "Management and Disposal Alternatives for NORM Wastes in Oil Production and Gas Plant Equipment" prepared for the American Petroleum Institute (RAE-8837/2-2)
24. <https://www.epa.gov/radiation/tenorm-oil-and-gas-production-wastes>
25. http://http://icrpaedia.org/Sources_of_Radiation_Exposure
26. http://ncbj.edu.pl/zasoby/wyklady/ld_podst_fiz_med_nukl-01/med_nukl_05_v4.pdf
27. Mietelski, J., Waś B. (1995) "Plutonium from Chernobyl in Poland", Applied Radiation and Isotopes 46, 1203-1211
28. Mietelski J., Dorda J., Waś B. (1999) "Pu-241 in samples of forest soil from Poland", Applied Radiation and Isotopes 51(4), 435-447
29. Currie L. A. (1968), "Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination", Application to Radiochemistry, Anal. Chem. 40, 586-593
30. Picano E. et al. (2014), "The appropriate and justified use of medical radiation in cardiovascular imaging: a position document of the ESC Associations of Cardiovascular Imaging, Percutaneous Cardiovascular Interventions and Electrophysiology", European Heart Journal, Volume 35, Issue 10, 665-672
31. Markiewicz M. (2004), „Podstawy modelowania rozprzestrzeniania się zanieczyszczeń w powietrzu atmosferycznym”, Oficyna Wydawnicza Politechniki Warszawskiej, Warszawa
32. Papastefanou C. (2008), "Radioactive aerosols", Elsevier, Amsterdam - Boston - ...- Tokyo
33. Damatto S.R. et al. (2013), "Be-7 MEASURED AT GROUND AIR LEVEL AND RAINFALL IN THE CITY OF SÃO PAULO", International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2013 Recife, PE, Brazil, November 24-29, 2013
34. Rödel W. (1965), "Cosmic-Ray-Produced and Artificial Sodium 22 in the Atmosphere", Journal of Geophysical Research Atmospheres 70(18), 4447-4452
35. Franic Z. et al. (2008), "Long-term investigations of radioactive matter in the air of Zagreb, Croatia", Atmospheric Research Vol. 89, Issue 4, 391-395
36. PAŃSTWOWA AGENCJA ATOMISTYKI Dpartament Szkolenia i Informacji Społecznej (1990), „Cztery lata po awarii jądrowej w Czarnobylu”, Warszawa
37. <http://www.wodr.poznan.pl/category-events/konkursy/item/2434-znaczenie-potasu-dla-ro%C5%9Blin>
38. Grabowska S., Mietelski J.W. et al.(2003) "Gamma Emitters on Micro-Becquerel Activity Level in Air at Kraków (Poland)", Journal of Atmospheric Chemistry 46, 103-116
39. Mietelski, J. Nalichowska E. et al. (2017) "Gamma emitters in atmospheric precipitation in Krakow (Southern Poland) during the years 2005-2015", J. Environ. Radioact., Volume 166, Part 1, Pages 10-16
40. Rastogi N., Sarin M.M. (2008), "Atmospheric 210Pb and 7Be in ambient aerosols over low- and high-altitude sites in semiarid region: Temporal variability and transport processes", JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH, VOL. 113, D11103
41. Baskaran M. (2011), "Po-210 and Pb-210 as atmospheric tracers and global atmospheric Pb-210 fallout: a Review", Journal of Environmental Radioactivity Vol. 102, Issue 5, 500-513
42. Kierepko R., Mietelski J.W. et al. (2016), "Plutonium isotopes in the atmosphere of Central Europe : isotopic composition and time evolution vs. circulation factors", Sci Total Environ. 569-570, 937-947
43. Kierepko R., Mietelski J.W. (2010), "Activity concentration of plutonium in atmospheric precipitation", NUKLEONIKA 55(2),201-204
44. Stankiewicz W., Wojtowicz J. (1975), „Zadania z matematyki dla wyższych uczelni technicznych”, PWN, Warszawa
45. IAEA-TECDOC-1663 (2011), „Radioactive particles in the Environment: Sources, Particle Characterization and Analytical Techniques”, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna
46. [Radioecology: nuclear energy and the environment Whicker, F.W.; Schultz, V.](#)
47. <https://en.wikipedia.org/wiki/Plutonium-241>

48. Neroda A. S. et al. (2016), "Long-range atmospheric transport Beryllium-7 to region the Sea of Japan", *Journal of Environmental Radioactivity* V. 160, 102-111
49. Yu, K.N., Lee, L.Y. (2002). Measurement of atmospheric Be-7 properties using high efficiency gamma spectroscopy. *Appl. Radiat. Isotopes* 57, 941-946
50. Papastefanou, C., Ioannidou, A. (1995). Aerodynamic size association of Be-7 in ambient aerosols. *J. Environ. Radioact.* 26, 273-282
51. Kondej D., Gawęda E. (2011), „Kryteria zdrowotne pobierania próbek aerozoli w środowisku pracy”, *Podstawy i Metody Oceny Środowiska Pracy* 2(68), 5–21
52. Pawelnd D.J., Puskin J.S. (2011), "EPA Radiogenic Cancer Risk Models and Projections for the U.S. Population", U.S. Environmental Protection Agency Office of Radiation and Indoor NW Washington
53. Jagielak J., Biernacka M., Zarucki R. (1995) "Method for determination of radionuclide concentrations in ground level air using the ASS-500 high volume sampler", International Atomic Energy Agency (IAEA)
54. Kondracki J. (2002), „Geografia Regionalna Polski”, PWN, Warszawa
55. Kowanetz L. (2007), „Stosunki anemologiczne, Klimat Krakowa w XX w.”, Instytut Geografii i Gospodarki Przestrzennej Uniwersytetu Jagiellońskiego, Kraków
56. Dziunikowski B. (1995) „Zastosowania izotopów promieniotwórczych część I”, Wydawnictwa AGH, Kraków
57. Mietelski J.W. (2003), „Spektrometria jądrowa w badaniu biodostępności radionuklidów z gorących cząstek typu paliwowego w środowisku leśnym” IFJ PAN 1921/B, Kraków
58. Genie™ 2000 Spectroscopy Software Customization Tools (2004), Canberra Industries
59. Debertin K., Helmer R.G. (1988), "Gamma and x ray spectrometry with semiconductor detectors", North Holland, the Netherlands
60. https://pl.wikipedia.org/wiki/Wz%C3%B3r_Bethego-Blocha#cite_note-1
61. Lisiecka-Długosz M., Bem H. (2012), "Determination of the mean aerosol residence times in the atmosphere and additional ²¹⁰Po input on the base of simultaneous determination of ⁷Be, ²²Na, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Bi and ²¹⁰Po in urban air", *J Radioanal Nucl Chem.* 293(1), 135–140
62. Mietelski J.W. (1989), „ P.I.M.P. - konwersacyjny program analiz widm promieniowania gamma dla komputera PC .”, Report INP No 1435/S, Kraków
63. National Report, Convention on Nuclear Safety, Third Report (2004), REPUBLIC OF HUNGARY
64. STUK-B-YTO 234 (2004), "Finnish Report On Nuclear Safety Convention On Nuclear Safety"
65. Hryniewicz A. Z. (1993) „Dawki i działanie biologiczne promieniowania jonizującego”, PAA IFJ, Warszawa
66. Mizutani T. et al. (2011), "Measurement of environmental gamma-ray dose rate around the Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, JAEA", *NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*, Vol. 1, 380-383
67. <https://19january2017snapshot.epa.gov/radiation/tenorm-sources.html>
68. Juda-Rezler K. i wsp. (2016), „Pyły drobne w atmosferze Kompendium wiedzy o zanieczyszczeniu powietrza pyłem zawieszonym w Polsce”, Biblioteka Monitoringu Środowiska, Warszawa
69. Hornung R.W. et al. (1990), "Estimation of Average Concentration in the Presence of Nondetectable Values", *Applied Occupational and Environmental Hygiene* 5(1), 46-51
70. <http://cameron.econ.ucdavis.edu/excel/ex11histogram.html>
71. Gostkowska B. (2011) „Wielkości, jednostki i obliczenia. Poradnik dla inspektorów ochrony radiologicznej”, Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej, Warszawa

72. Błażej S., Mietelski J. (2014) "Cosmogenic ^{22}Na , ^7Be and terrestrial ^{137}Cs , ^{40}K radionuclides in ground level air samples collected weekly in Kraków (Poland) over years 2003–2006", *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 300(2), 747–756
73. Mukaka MM. (2012), "A guide to appropriate use of Correlation coefficient in medical research", *Malawi Med J.* 24(3), 69-71
74. Schober P. et al. (2018), "Correlation Coefficients: Appropriate Use and Interpretation", *Anesthesia & Analgesia* 126(5),1
75. Kierepko R. (2010)), „Identyfikacja aktualnych źródeł plutonu w powietrzu”, IFJ PAN
76. Muramatsu Y. et al. (2000), "Concentrations of ^{239}Pu and ^{240}Pu and Their Isotopic Ratios Determined by ICP-MS in Soils Collected from the Chernobyl 30-km Zone", *Environ. Sci. Technol.* 34 (14), 2913–2917
77. Bossew P. et al. (2007), "Activity ratios of ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ in environmental samples", *Journal of Environmental Radioactivity*, Volume 97, Issue 1, 5-19
78. Larose D.T. (2009), "Odkrywanie Wiedzy z Danych", *Wyd. Nauk. PWN, Warszawa*
79. [https://pl.wikipedia.org/wiki/Cross Industry Standard Process for Data Mining](https://pl.wikipedia.org/wiki/Cross_Industry_Standard_Process_for_Data_Mining)
80. Kruskal W., Wallis W. (1952), "Use of Ranks in One-Criterion Variance Analysis" *Journal of the American Statistical Association*, Vol. 47, No. 260., 583-621
81. Dunn O. J. (1964), Multiple comparisons using rank sums. *Technometrics*, 6, 241–252
82. Hoagalin D. (2003), "John W. Tukey and Data Analysis", *Statistical Science* 2003, Vol. 18, No. 3, 311–318
83. Snarska A. (2005), „Statystyka. Ekonometria. Prognozowanie. Ćwiczenia z Excelem.”, *Wydawnictwo Placet*
84. Szabatin J. (2004), "Przetwarzanie sygnałów", *Politechnika Warszawska Ośrodek Kształcenia na Odległość OKNO, Warszawa*
85. <https://www.nucleonica.com/Application/ReducedDecaySchemes/>
86. Al-Zamel A.Z. et al. (2006), "Determination of the sediment deposition rates in the Kuwait Bay using ^{137}Cs and ^{210}Pb ", *Nukleonika* 51, 39-44
87. Duneas C. et al. (2009), " ^7Be to ^{210}Pb concentration ratio in ground level air in Málaga (36.7°N , 4.5°W)", *Atmospheric Research* 92(1), 49-57
88. Pham M.K. et al. (2011), "Temporal changes of ^7Be , ^{137}Cs and ^{210}Pb activity concentrations in surface air at Monaco and their correlation with meteorological parameters", *Journal of Environmental Radioactivity* Vol 102, Issue 11,1045-1054
89. Ioannidou A. et al. (2005), "Temporal changes of ^7Be and ^{210}Pb concentrations in surface air at temperate latitudes (40°N)", *Applied Radiation and Isotopes* Vol 63, Issue 2, 277-284
90. Sykora I. et al. (2017), "Long-term variations of radionuclides in the Bratislava air", *Journal of Environmental Radioactivity* Vol 166, Part 1, 27-35
91. Aldahan A. et al. (2001), "Atmospheric interactions at northern high latitudes from weekly Be-isotopes in surface air", *Applied Radiation and Isotopes* Vol 54, Issue 2, 345-353
92. Solanki, S.K. et al. (2006), „The solar magnetic field”, *Rep. Progress. Phys.* 69 (3), 83
93. Rajacic M. M. et al. (2017), "The impact of the Solar magnetic field on (^7Be) activity concentration in aerosols", *Applied Radiation and Isotopes* 125, 27–29
94. https://en.wikipedia.org/wiki/Solar_cycle_24#2014
95. Mohan M.P. et al. (2018), "A study of temporal variations of ^7Be and ^{210}Pb concentrations and their correlations with rainfall and other parameters in the South West Coast of India", *Journal of Environmental Radioactivity* Vol. 192,194-207

96. Leppanen A.P. et al. (2012), "Cosmogenic ^7Be and ^{22}Na in Finland: production, observed periodicities and connection to climatic phenomena", *J Atmos Solar Terr Phys* 74,164–180
97. Steinmann P. et al. (2013), "Cosmogenic ^7Be and ^{22}Na in ground level air in Switzerland 1994–2011", *J Environ Radioact* 124,68–73
98. McNeary D., Baskaran M. (2003), "Depositional characteristics of ^7Be and ^{210}Pb in southeastern Michigan", *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH*, VOL. 108, NO. D7, 4210
99. Lozano R. L. et al. (2012), "Meteorological factors influencing the ^7Be and ^{210}Pb concentrations in surface air from the southwestern Iberian Peninsula", *Atmospheric Environment* 63,168-178
100. Koźmiński i inni (1998), "Agrometeorologia", Wydaw. Naukowe PWN, Warszawa
101. Wershofen H., Arnold D. (2005), "Radionuclides in Ground-level Air in Braunschweig – Report of the PTB Trace Survey Station from 1998 to 2003", *Physikalisch-Technische Bundesanstalt Radioaktivität PTB-Ra-45*
102. Sykora I. et al. (2012), "Resuspension processes controll variations of ^{137}Cs activity concentrations in the ground-level air", *J Radioanal Nucl Chem* 293, 595–599
103. Palasz A. (2014), "Zmienność inwersji temperatury powietrza nad Krakowem w świetle warunków cyrkulacyjnych", *Prace Geograficzne IGiGP UJ* 138, 29-43
104. Mietelski J.W. et al. (2014), "Long-range transport of gaseous ^{131}I and other radionuclides from Fukushima accident to Southern Poland", *Atmospheric Environment*, 137-14
105. Evangelidou N. et al. (2016), "Resuspension and atmospheric transport of radionuclides due to wildfires near the Chernobyl Nuclear Power Plant in 2015: An impact assessment", *Scientific Reports* volume 6, Article number: 2606
106. Wershofen H. et al. (2001), "Measurement of plutonium isotopes in ground-level air in Northern-Germany - History and recent results", *Nukleonika* 46(4),155-159
107. Chamizo E. et al. (2010), "Measurement of plutonium isotopes, ^{239}Pu and ^{240}Pu , in air-filter samples from Seville (2001–2002)", *Atmospheric Environment* 44(15), 1851-1858
108. Holgye Z. (2008), "Plutonium isotopes in surface air of Prague in 1986-2006", *Journal of Environmental Radioactivity* 99(10), 1653-5
109. Duneas C. et al. (2017), " ^7Be , ^{210}Pb and ^{40}K depositions over 11 years in Malaga", *Journal of Environmental Radioactivity* Vol. 178–179, 325-334
110. Ioannidou A., Papastefanou C. (2006), "Precipitation scavenging of ^7Be and ^{137}Cs radionuclides in air", *Journal of Environmental Radioactivity* Vol 85, Issue 1,121-136
111. Ishikawa Y., Murakami H. (1995), "Precipitation Scavenging Studies of Radionuclides in Air Using Cosmogenic ^7Be ", *J. Environ. Radioactivity* 26,19-36
112. Renfro A. A. et al. (2013), "Atmospheric fluxes of ^7Be and ^{210}Pb on monthly time-scales and during rainfall events at Stony Brook, New York (USA)", *Journal of Environmental Radioactivity* 116,114-123
113. Pham M. K. et al. (2013), "Dry and wet deposition of ^7Be , ^{210}Pb and ^{137}Cs in Monaco air during 1998-2010: Seasonal variations of deposition fluxes", *Journal of Environmental Radioactivity* 120, 45-57
114. Caillet S. et al. (2001), "Factors controlling ^7Be and ^{210}Pb atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland", *Journal of Environmental Radioactivity* 53,241-256
115. Alonso-Hernandez C.M. et al. (2006), "Atmospheric deposition of ^{137}Cs between 1994 and 2002 at Cienfuegos, Cuba", *Journal of Environmental Radioactivity* 88,199-204

116. Mergentaler J. (1985), "Some solar activity influences on terrestrial phenomena", *Postępy Astronomii* tom XXXIII, zeszyt 3-4
117. https://pl.wikipedia.org/wiki/Okno_czasowe
118. Państwowa Inspekcja Ochrony Środowiska, Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej, Państwowa Agencja Atomistyki (1991), „Radiologiczny Atlas Polski”, Biblioteka Monitoringu Środowiska, Warszawa
119. Długosz M., Bem H. (2009), „ ^{210}Pb and ^{210}Po radionuclides in the urban air of Lodz, Poland”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 283(3), 719-725

V. Spis tabel

Tabela 1. Najważniejsze izotopy pierwotne występujące w skorupie ziemskiej [4,5].....	13
Tabela 2. Wybrane izotopy kosmogeniczne [5].....	17
Tabela 3. Wybrane radionuklidy uwolnione do środowiska w wyniku katastrofy w Czarnobylu [45].....	20
Tabela 4. Zawartość izotopów radu w odpadach z przemysłu naftowego i gazowego [22].....	22
Tabela 5. Roczna emisja do atmosfery wybranych rodzajów aerozoli [31].	24
Tabela 6. Szybkość depozycji suchej vd [cm/s] dla wybranych aerozoli atmosferycznych [32]	27
Tabela 7. Współczynnik wymywania dla wybranych aerozoli atmosferycznych W [32].....	29
Tabela 8. Charakterystyka rozpadów wybranych izotopów plutonu [4].....	32
Tabela 9. Stosunki aktywności Pu-238/Pu-239+240 i Pu-239+240/Cs-137 charakterystyczne dla wybranych źródeł skażeń izotopami plutonu [75,76,77].....	33
Tabela 10. Wartości czynnika wagowego promieniowania, w_R [18].	40
Tabela 11. Wartości czynnika wagowego tkanki, w_T [18].....	41
Tabela 12. Obciążająca dawka skuteczna $e(g)$ dla osób z ogółu ludności od wniknięcia radionuklidu o aktywności 1 Bq drogą pokarmową [Sv] oraz wartości czynnika f_1 stosowanego przy obliczeniu tej dawki [18].....	42
Tabela 13. Obciążająca dawka skuteczna $e(g)$ dla osób z ogółu ludności od wniknięcia radionuklidu o aktywności 1 Bq drogą oddechową [Sv] oraz wartości czynnika f_1 stosowanego przy obliczeniu tej dawki [18].....	42
Tabela 14. Średnie roczne dawki efektywne otrzymywane przez mieszkańca Ziemi [14, 25].....	43
Tabela 15. Roczne dawki graniczne wg. Rozporządzenia Rady Ministrów z 2005r [18].....	45
Tabela 16. Wykaz izotopów źródła wzorcowego.	57
Tabela 17. Stężenia aktywności izotopów Pu-238 i Pu-239+240 w materiale referencyjnym IAEA-375.	67
Tabela 18. Liczba uzyskanych wyników pomiarowych dla próbek całkowitego opadu atmosferycznego.	75
Tabela 19. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów gamma spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego.....	77
Tabela 20. Wyniki statystyki opisowej pomiarów depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.	77
Tabela 21. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.	77
Tabela 22. Średnie miesięczne sezonowe depozycje aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.	78
Tabela 23. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.	78
Tabela 24. Liczba uzyskanych wyników pomiarowych dla próbek aerozoli atmosferycznych.....	82
Tabela 25. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów gamma spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych.....	84
Tabela 26. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	85
Tabela 27. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych.	85
Tabela 28. Liczba wyników pomiarowych uzyskana w pomiarach aktywności izotopów plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	88
Tabela 29. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów alfa spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego.....	89
Tabela 30. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	89
Tabela 31. Wyniki statystyki opisowej pomiarów depozycji aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	90
Tabela 32. Średnie miesięczne sezonowe depozycje aktywności izotopów plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	90
Tabela 33. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów plutonu w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	90
Tabela 34. Liczba wyników pomiarowych uzyskana w pomiarach stężenia aktywności izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych.	92
Tabela 35. Oszacowane wartości wyników pomiarowych poniżej limitu detekcji dla pomiarów alfa spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych.....	93

Tabela 36. Wyniki statystyki opisowej pomiarów stężenia aktywności izotopów plutonu zawartych w próbkach aerozoli atmosferycznych.	93
Tabela 37. Średnie miesięczne sezonowe stężenia aktywności izotopów plutonu w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	93
Tabela 38. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzanego stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza.....	95
Tabela 39. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora z pominięciem wyników dla detektora nr 4.	96
Tabela 40. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzanego stężenia aktywności Pb-210 od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza.	97
Tabela 41. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzanego stężenia aktywności K-40 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza.	98
Tabela 42. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzanego stężenia aktywności Cs-137 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza.	100
Tabela 43. Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzanego stężenia aktywności Na-22 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza.	102
Tabela 44. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.	121
Tabela 45. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.	122
Tabela 46. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - WIOSNA.....	122
Tabela 47. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego bez 05.2011 - WIOSNA.....	123
Tabela 48. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - LATO.	123
Tabela 49. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - JESIEŃ.....	124
Tabela 50. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - ZIMA.....	124
Tabela 51. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - WIOSNA.....	124
Tabela 52. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego bez 05.2011 - WIOSNA.	125
Tabela 53. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - LATO.	126
Tabela 54. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - JESIEŃ.....	126
Tabela 55. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - ZIMA.....	126
Tabela 56. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych.	127
Tabela 57. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - WIOSNA.....	127
Tabela 58. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - LATO.	128
Tabela 59. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - JESIEŃ.	128
Tabela 60. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych - ZIMA.....	128
Tabela 61. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych.	129
Tabela 62. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - WIOSNA.....	129
Tabela 63. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - LATO.	129

Tabela 64. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - JESIEŃ.	130
Tabela 65. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach aerozoli atmosferycznych - ZIMA.....	130
Tabela 66. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego	131
Tabela 67. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – WIOSNA.....	131
Tabela 68. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – LATO.	132
Tabela 69. Korelacje Spearmana stężenia aktywności Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – JESIEŃ.	132
Tabela 70 . Korelacje Spearmana stężenia aktywności Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – ZIMA.....	132
Tabela 71. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	132
Tabela 72. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego -WIOSNA.....	133
Tabela 73. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - LATO.....	133
Tabela 74. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopu Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego – JESIEŃ.	133
Tabela 75. Korelacje Spearmana depozycji aktywności izotopu Pu-239+240 i izotopów gamma promieniotwórczych w miesięcznych próbkach całkowitego opadu atmosferycznego - ZIMA.....	133
Tabela 76. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych.	134
Tabela 77. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- WIOSNA.....	134
Tabela 78. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- LATO.	135
Tabela 79. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- JESIEŃ.	135
Tabela 80. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów plutonu i izotopów gamma promieniotwórczych w próbkach aerozoli atmosferycznych- ZIMA.....	135
Tabela 81. Korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych z zapyleniem w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych (po lewej) i w próbkach miesięcznych (po prawej).	137
Tabela 82. Sezonowe korelacje Spearmana stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych z zapyleniem w tygodniowych próbkach aerozoli atmosferycznych.....	138
Tabela 83. Średnie sezonowe wartości wielkości meteorologicznych dla Krakowa.....	151
Tabela 84. Zmienne objaśniające dynamikę zmian stężenia aktywności wybranych radioizotopów zawartych w przygruntowej warstwie powietrza wraz z informacją o wartości współczynników ustandaryzowanych.....	152
Tabela 85. Zmienne objaśniające dynamikę zmian depozycji aktywności wybranych radioizotopów zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym wraz z informacją o wartości współczynników ustandaryzowanych.....	152
Tabela 86. Zmienne objaśniające dynamikę zmian stężenia aktywności wybranych radioizotopów zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym wraz z informacją o wartości współczynników ustandaryzowanych.....	153
Tabela 87. Istotne statystycznie korelacje wzajemne stężenia aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych zawartych w przygruntowej warstwie powietrza i wybranych wskaźników meteorologicznych.	153
Tabela 88. Istotne statystycznie korelacje wzajemne depozycji aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym i wybranych wskaźników meteorologicznych.	154
Tabela 89. Istotne statystycznie korelacje wzajemne stężenia aktywności rozważanych izotopów promieniotwórczych zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym i wybranych wskaźników meteorologicznych.	154
Tabela 90. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	156
Tabela 91. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	157

Tabela 92. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2012-2016.....	158
Tabela 93. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności N-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2005-2006.....	159
Tabela 94. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych w okresie 2008-2016.....	160
Tabela 95. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2012-2016.....	161
Tabela 96. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	162
Tabela 97. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	163
Tabela 98. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2005-2016.....	164
Tabela 99. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2010-2016.....	165
Tabela 100. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2005-2016.....	166
Tabela 101. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2010-2016.....	167
Tabela 102. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych z lat 2005-2016.....	168
Tabela 103. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych 2010-2016.....	169
Tabela 104. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych 2005-2016.....	170
Tabela 105. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych 2010-2016.....	171
Tabela 106. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych 2005-2016.....	172
Tabela 107. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych 2010-2016.....	173
Tabela 108. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.....	174
Tabela 109. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.....	175
Tabela 110. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.....	176
Tabela 111. Parametry składowych liniowych i okresowych wykrytych w szeregu czasowym pomiarów stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych z okresu 2010 – lipiec 2013.....	177
Tabela 112. Roczne dawki równoważne uzyskane dla poszczególnych izotopów gamma promieniotwórczych.....	179
Tabela 113. Średnia dobową i miesięczną objętość wdychanego powietrza z podziałem na grupy wiekowe [75].....	179
Tabela 114. Roczne efektywne dawki obciążające od inhalacji poszczególnych izotopów z podziałem na grupy wiekowe.....	180

VI. Spis rysunków

Rysunek 1. Naturalne szeregi promieniotwórcze [5].....	15
Rysunek 2. Uproszczony schemat obiegu radioizotopów w środowisku [46].....	31
Rysunek 3. Procesy produkcji izotopów plutonu w paliwie jądrowym [47].	32
Rysunek 4. Schemat rozpadu izotopu Cs-137 [85].	34
Rysunek 5. Schemat rozpadu izotopu K-40 [85].....	35
Rysunek 6. Schemat rozpadu izotopu Pb-210 [85].....	36
Rysunek 7. Schemat rozpadu izotopu Be-7 [85].	37
Rysunek 8. Schemat rozpadu izotopu Na-22 [85]	38
Rysunek 9. Mapa geofizyczna Polski [54].....	49
Rysunek 10. Mapa geofizyczna Krakowa. Zaznaczono położenie stacji pomiarowej IFJ PAN [55].	49
Rysunek 11. Częstość kierunków bez udziału cisz w % (A) i średnie roczne prędkości wiatru [m/s] (B) w Krakowie (1961-1980) [55].	50
Rysunek 12. Tor spektrometryczny z detektorem HPGe.....	55
Rysunek 13. Widmo promieniowania gamma uzyskane dla tygodniowej próbki aerozoli atmosferycznych.....	56
Rysunek 14. Widmo promieniowania alfa czterotygodniowej próbki aerozoli atmosferycznych.	62
Rysunek 15. Model procesu eksploracji danych CRISP-DM. [79]	68

VII. Spis wykresów

Wykres 1. Wiekowa równowaga promieniotwórcza.....	10
Wykres 2. Przejściowa równowaga promieniotwórcza.....	11
Wykres 3. Brak równowagi promieniotwórczej.....	12
Wykres 4. Zależność ryzyka wystąpienia nowotworów od pochłoniętej dawki w różnych modelach dawka-skutek [30].	39
Wykres 5. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	75
Wykres 6. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	75
Wykres 7. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	76
Wykres 8. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	76
Wykres 9. Histogram częstości występowania wyników stężenia i depozycji aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	76
Wykres 10. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	78
Wykres 11. Zmienność w czasie stężenia aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	79
Wykres 12. Zmienność w czasie stężenia aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	79
Wykres 13. Zmienność w czasie stężenia aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	79
Wykres 14. Zmienność w czasie stężenia aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	80
Wykres 15. Zmienność w czasie depozycji aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	80
Wykres 16. Zmienność w czasie depozycji aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	80
Wykres 17. Zmienność w czasie depozycji aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	81
Wykres 18. Zmienność w czasie depozycji aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	81
Wykres 19. Zmienność w czasie depozycji aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	81
Wykres 20. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	83
Wykres 21. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	83
Wykres 22. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	83
Wykres 23. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	84
Wykres 24. Histogram częstości występowania wyników stężenia aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	84
Wykres 25. Zmienność w czasie stężenia aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	86
Wykres 26. Zmienność w czasie stężenia aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	86
Wykres 27. Zmienność w czasie stężenia aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	86
Wykres 28. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	87
Wykres 29. Zmienność w czasie stężenia aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych. W 2011 roku widać podwyższone stężenia, w związku z awarią EJ w Fukuszymie.....	87
Wykres 30. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia i depozycji aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	88
Wykres 31. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	89
Wykres 32. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	90
Wykres 33. Zmienność w czasie depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.	91
Wykres 34. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	91
Wykres 35. Zmienność w czasie depozycji aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego.....	91
Wykres 36. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych.	92
Wykres 37. Histogramy częstości występowania wyników pomiarowych stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	92

Wykres 38. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	93
Wykres 39. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych.....	94
Wykres 40. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	95
Wykres 41. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzanego stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	96
Wykres 42. Prezentacja wyników testu Dunna zależności minimalnej mierzanego stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora z pominięciem wyników pomiarowych uzyskanych przy pomocy detektora nr 4.....	96
Wykres 43. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Pb-210 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	97
Wykres 44. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzanego stężenia aktywności Pb-210 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	98
Wykres 45. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności K-40 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	99
Wykres 46. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzanego stężenia aktywności K-40 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	100
Wykres 47. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Cs-137 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	101
Wykres 48. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzanego stężenia aktywności Cs-137 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	102
Wykres 49. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności stężenia aktywności Na-22 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	103
Wykres 50. Prezentacja wyników testu Tukeya oraz Dunna zależności minimalnego mierzanego stężenia aktywności Na-22 od rodzaju detektora ('detektor') i konfiguracji filtrów powietrza ('filtr').....	104
Wykres 51. Zmienność w czasie stężenia aktywności Be-7 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.....	106
Wykres 52. Zmienność w czasie stężenia aktywności Na-22 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.....	106
Wykres 53. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pb-210 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.....	107
Wykres 54. Zmienność w czasie stężenia aktywności K-40 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.....	107
Wykres 55. Zmienność w czasie stężenia aktywności Cs-137 z zaznaczeniem rodzaju detektora oraz konfiguracji filtrów powietrza wykorzystywanych w poszczególnych okresach pomiarowych.....	108
Wykres 56. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	109
Wykres 57. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	110
Wykres 58. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	111
Wykres 59. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające. Na wykresie pominięto okres bezpośrednio po awarii EJ w Fukuszymie.....	112
Wykres 60. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Pb-210 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	113
Wykres 61. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności K-40 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	114
Wykres 62. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Na-22 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	115
Wykres 63. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Cs-137 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	116
Wykres 64. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Be-7 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	117
Wykres 65. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	118
Wykres 66. Zmienność w czasie stężenia aktywności i aktywności całkowitej Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	119

Wykres 67. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	119
Wykres 68. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-238 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po usunięciu danych z okresu 08.2013-05.2014.....	120
Wykres 69. Zmienność w czasie stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z zaznaczeniem punktów zakwalifikowanych przez algorytm, jako obserwacje odstające.....	120
Wykres 70. Zmienność w czasie stężenia aktywności Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po usunięciu danych z okresu 08.2013-05.2014.....	121
Wykres 71. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137, a stężeniem aktywności K-40 z uwzględnieniem obserwacji odstającej (z lewej strony) i po jej odrzuceniu (z prawej strony) - WIOSNA.....	122
Wykres 72. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pb-210, a stężeniem aktywności K-40 - LATO.....	123
Wykres 73. Wykres zależności między depozycją aktywności Cs-137, a stężeniem aktywności K-40 z uwzględnieniem obserwacji odstającej (z lewej strony) i po jej odrzuceniu (z prawej strony) - WIOSNA.....	125
Wykres 74. Wykres zależności między depozycją aktywności Na-22, a depozycją aktywności Be-7 z uwzględnieniem wyników poniżej limitu detekcji(z lewej strony) i po ich odrzuceniu (z prawej strony) - WIOSNA.....	125
Wykres 75. Wykres zależności między depozycją aktywności Pb-210, a depozycją aktywności Be-7 - JESIEŃ	126
Wykres 76. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Cs-137 (po lewej) oraz Pu-239+240 i K-40 (po prawej)	131
Wykres 77. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i K-40 - WIOSNA.....	134
Wykres 78. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Pu-238 z uwzględnieniem wszystkich obserwacji (po lewej) i po odrzuceniu obserwacji odstającej (po prawej) – WIOSNA.	135
Wykres 79. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Pb-210 - LATO.....	135
Wykres 80. Wykres zależności między stężeniem aktywności Pu-239+240 i Be-7 – ZIMA.	136
Wykres 81. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137 a zapyleniem z uwzględnieniem wszystkich punktów (po lewej) i po odrzuceniu obserwacji odległych (po prawej).	137
Wykres 82. Wykres zależności między stężeniem aktywności K-40 a zapyleniem z uwzględnieniem wszystkich punktów (po lewej) i po odrzuceniu wyników K-40 poniżej MDC (po prawej).	137
Wykres 83. Wykres zależności między stężeniem aktywności K-40 a zapyleniem - WIOSNA (po lewej) i LATO (po prawej).	138
Wykres 84. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137 a zapyleniem - JESIEŃ.....	138
Wykres 85. Wykres zależności między stężeniem aktywności Cs-137 a zapyleniem z uwzględnieniem wszystkich punktów (po lewej) i po odrzuceniu obserwacji odległych (po prawej) – ZIMA.	139
Wykres 86. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Be-7 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.....	140
Wykres 87. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Na-22 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.....	140
Wykres 88. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności K-40 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.....	141
Wykres 89. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pb-210 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym.....	141
Wykres 90. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Cs-137 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym w okrsie 2012-2016.	142
Wykres 91. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym dla okresu 01.2010-07.2013.	142
Wykres 92. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym dla okresu 06.2014-12.2016.	143
Wykres 93. Wykres korelacji krzyżowych stężenia i depozycji aktywności Pu-239+240 w powietrzu i w całkowitym opadzie atmosferycznym dla okresu 06.2014-12.2016 bez obserwacji odległej.	143
Wykres 94. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.....	145
Wykres 95. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-238 i aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji.	145
Wykres 96. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 lub Pu-238 była poniżej limitu detekcji.	145

Wykres 97. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.....	146
Wykres 98. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Cs-137 i aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji.....	146
Wykres 99. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach całkowitego opadu atmosferycznego po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 lub Cs-137 była poniżej limitu detekcji.....	146
Wykres 100. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.....	147
Wykres 101. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-238 i aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji.....	148
Wykres 102. Zmienność w czasie stosunku aktywności Pu-238/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 lub Pu-238 była poniżej limitu detekcji.....	148
Wykres 103. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych z uwzględnieniem wszystkich obserwacji.....	148
Wykres 104. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji z zaznaczeniem wartości stosunku odpowiadającego awarii w Czarnobylu.....	149
Wykres 105. Zmienność w czasie stosunku aktywności Cs-137/Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych po odrzuceniu punktów, dla których aktywność Pu-239+240 była poniżej limitu detekcji z zaznaczeniem wartości stosunku odpowiadającego globalnemu opadowi promieniotwórczemu.....	149
Wykres 106. Róża wiatrów dla Krakowa [%].....	151
Wykres 107. Stężenie aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawione w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	155
Wykres 108. Stężenie aktywności Be-7 w próbkach aerozoli atmosferycznych w latach 2005-2008 (cykl słoneczny nr 23) i 2009-2014 (cykl słoneczny nr 24), przedstawione w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	156
Wykres 109. Stężenie aktywności Cs-137 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	157
Wykres 110. Stężenie aktywności K-40 w próbkach aerozoli atmosferycznych w latach 2012-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	158
Wykres 111. Stężenie aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2005-2006, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	159
Wykres 112. Stężenie aktywności Na-22 w próbkach aerozoli atmosferycznych z lat 2008-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	160
Wykres 113. Stężenie aktywności Pb-210 w próbkach aerozoli atmosferycznych w latach 2012-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	161
Wykres 114. Stężenie aktywności Pu-238 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawione w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	162
Wykres 115. Stężenie aktywności Pu-239+240 w próbkach aerozoli atmosferycznych, przedstawione w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	163
Wykres 116. Depozycja aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	164
Wykres 117. Stężenie aktywności Be-7 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	165
Wykres 118. Depozycja aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	166
Wykres 119. Stężenie aktywności Cs-137 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	167
Wykres 120. Depozycja aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	168
Wykres 121. Stężenie aktywności K-40 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	169
Wykres 122. Depozycja aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	170
Wykres 123. Stężenie aktywności Na-22 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	171

Wykres 124. Depozycja aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2005-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	172
Wykres 125. Stężenie aktywności Pb-210 w próbkach opadów atmosferycznych w latach 2010-2016, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową.....	173
Wykres 126. Depozycja aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.	174
Wykres 127. Stężenie aktywności Pu-238 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.	175
Wykres 128. Depozycja aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.	176
Wykres 129. Stężenie aktywności Pu-239+240 w próbkach opadów atmosferycznych, przedstawiona w dziedzinie częstotliwości oraz w dziedzinie czasu wraz ze składową liniową i okresową z okresu czerwiec 2010 – lipiec 2013.	177
Wykres 130. Zmienność w czasie sumarycznej miesięcznej efektywnej dawki obciążającej pochodzącej od rozważanych izotopów z podziałem na grupy wiekowe.	180
Wykres 131. Zmienność w czasie miesięcznej efektywnej dawki obciążającej pochodzącej od inhalacji wszystkich rozważanych izotopów dla grupy wiekowej 12-17 lat wraz ze zmiennością stężenia aktywności Pb-210.....	180

VIII. Aneksy

1. Wyniki modelu regresji wielokrotnej i analizy korelacji stężenia oraz depozycji aktywności radioizotopów w badanych próbkach od wybranych wskaźników meteorologicznych

Model regresji wielokrotnej zależności stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w przygruntowej warstwie powietrza od wybranych czynników meteorologicznych

Be-7

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,70
R kwadrat	0,49
Dopasowany R kwadrat	0,49
Błąd standardowy	1244
Obserwacje	626

ANALIZA WARIANCJI					
	Df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	5	920280589	184056118	119	3,7E-88
Resztkowy	620	958805637	15464608		
Razem	625	1879086226			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		10628	635	16,74	0,00
Zachmurzenie ogólne	-0,13	-151	50	-3,04	0,00
Temp. termometru suchego	0,25	52	7,7	6,84	0,00
Wilgotność względna	-0,40	-78	8,7	-8,99	0,00
SW	-0,11	-278	78	-3,58	0,00
NW	-0,08	-670	265	-2,53	0,01

Pb-210

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,55
R kwadrat	0,30
Dopasowany R kwadrat	0,30
Błąd standardowy	335
Obserwacje	626

ANALIZA WARIANCJI	Df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	7	30053595	4293371	38	9,8E-45
Resztkowy	618	69155329	111902		
Razem	625	99208923			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		-12534	2211	-5,67	0,00
Wilgotność względna	0,10	4,7	1,6	2,96	0,00
Ciśnienie na p. m.	0,20	12,6	2,2	5,77	0,00
NE	0,34	184	22	8,32	0,00
E	-0,18	-219	49	-4,43	0,00
W	-0,21	-115	24	-4,87	0,00
NW	-0,12	-225	76	-2,96	0,00

K-40

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,30
R kwadrat	0,09
Dopasowany R kwadrat	0,09
Błąd standardowy	15
Obserwacje	626

ANALIZA WARIANCJI	Df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	3	13690	4563	21	8,2E-13
Resztkowy	622	136919	220		
Razem	625	150609			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		46,9	2,9	16,13	0,00
Zachmurzenie ogólne	-0,20	-2,27	0,47	-4,79	0,00
Temp. termometru suchego	-0,26	-0,50	0,08	-6,01	0,00
W	-0,16	-3,26	0,84	-3,87	0,00

Cs-137

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,50
R kwadrat	0,25
Dopasowany R kwadrat	0,24
Błąd standardowy	1,02
Obserwacje	621

ANALIZA WARIANCJI	Df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	6	207	34	33	6,0E-35
Resztkowy	614	633	1		
Razem	620	840			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		-13,0	7,0	-1,86	0,06
Temp. termometru suchego	-0,53	-0,07	0,01	-11,49	0,00
Wilgotność względna	-0,27	-0,03	0,01	-5,71	0,00
Ciśnienie na p. m.	0,10	0,02	0,01	2,60	0,01
E	-0,21	0,30	0,15	2,07	0,04
SW	-0,11	-0,30	0,07	-4,29	0,00
NW	-0,53	-0,54	0,22	-2,42	0,02

Pu-239+240

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,60
R kwadrat	0,36
Dopasowany R kwadrat	0,35
Błąd standardowy	9,5E-10
Obserwacje	83

ANALIZA WARIANCJI	Df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	2	4,1E-17	2,0E-17	23	1,5E-08
Resztkowy	80	7,2E-17	9,0E-19		
Razem	82	1,1E-16			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		8,24E-09	1,25E-09	6,57	0,00
Zachmurzenie ogólne	-0,36	-4,41E-10	1,53E-10	-2,87	0,01
Wilgotność względna	-0,30	-4,99E-11	2,08E-11	-2,40	0,02

Pu-238

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,44
R kwadrat	0,19
Dopasowany R kwadrat	0,16
Błąd standardowy	1,1E-10
Obserwacje	84

ANALIZA WARIANCJI	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	3	2,3E-19	7,6E-20	6,4	0,00063
Reszkowy	80	9,5E-19	1,2E-20		
Razem	83	1,2E-18			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		4,42E-10	1,02E-10	4,35	0,00
Zachmurzenie ogólne	-0,42	-5,13E-11	1,65E-11	-3,11	0,00
Temp. termometru suchego	-0,38	-5,89E-12	2,09E-12	-2,81	0,01
NW	0,28	2,83E-10	1,01E-10	2,79	0,01

Korelacje wzajemne stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych próbkach aerozoli atmosferycznych z wybranymi czynnikami meteorologicznymi

		K-40	Na-22	Cs-137	Pb-210	Be-7	Pu-239+240	Pu-238
Zachmurzenie ogólne	R	-0,11	0,00	-0,01	0,03	-0,55	-0,56	-0,21
	P	0,01	0,98	0,80	0,43	0,00	0,00	0,05
Temp. termometru suchego	R	-0,15	-0,06	-0,36	-0,24	0,56	0,51	-0,05
	P	0,00	0,13	0,00	0,00	0,00	0,00	0,63
Wilgotność względna	R	0,01	0,06	0,04	0,21	-0,63	-0,54	-0,18
	P	0,82	0,17	0,35	0,00	0,00	0,00	0,11
Ciśnienie na p.m.	R	0,14	-0,01	0,22	0,25	-0,01	-0,02	0,14
	P	0,00	0,80	0,00	0,00	0,73	0,86	0,22
Suma opadu	R	-0,19	-0,03	-0,21	-0,19	-0,04	0,02	-0,06
	P	0,00	0,47	0,00	0,00	0,29	0,83	0,61
Opady ciekłe	R	-0,20	-0,03	-0,24	-0,19	0,02	0,13	-0,05
	P	0,00	0,41	0,00	0,00	0,56	0,23	0,66
Opady śniegowe i lodowe	R	-0,01	0,01	0,07	-0,02	-0,22	-0,45	-0,03
	P	0,72	0,79	0,07	0,60	0,00	0,00	0,80
N	R	-0,06	-0,05	-0,02	-0,05	0,05	0,11	-0,06
	P	0,16	0,23	0,64	0,24	0,24	0,33	0,56
NE	R	0,17	0,06	0,28	0,42	-0,04	-0,16	-0,04
	P	0,00	0,15	0,00	0,00	0,32	0,15	0,70
E	R	0,07	0,03	0,18	0,08	0,19	0,21	0,13
	P	0,07	0,53	0,00	0,05	0,00	0,06	0,25
SE	R	-0,01	0,02	-0,08	-0,06	0,23	0,33	-0,01
	p	0,84	0,65	0,05	0,14	0,00	0,00	0,96
S	R	0,03	0,02	-0,15	-0,09	0,08	0,04	-0,05
	p	0,49	0,66	0,00	0,02	0,05	0,75	0,63
SW	R	-0,07	-0,04	-0,15	-0,19	-0,25	-0,28	-0,07
	p	0,06	0,35	0,00	0,00	0,00	0,01	0,51
W	R	-0,19	-0,03	-0,13	-0,35	-0,10	-0,01	0,17
	p	0,00	0,50	0,00	0,00	0,01	0,93	0,13
NW	R	-0,15	-0,03	-0,10	-0,23	0,00	0,15	0,29
	p	0,00	0,43	0,02	0,00	0,97	0,18	0,01

Model regresji wielokrotnej zależności depozycji aktywności izotopów promieniowców zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym od wybranych czynników meteorologicznych

Be-7

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,86
R kwadrat	0,73
Dopasowany R kwadrat	0,72
Błąd standardowy	46
Obserwacje	137

ANALIZA WARIANCJI					
	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	5	761762	152353	72	6,6E-36
Resztkowy	131	277016	2115		
Razem	136	1038779			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		-43,2	11,9	-3,63	0,00
Temp. termometru suchego	0,33	3,66	0,65	5,62	0,00
Suma opadu	0,71	1,52	0,11	14,00	0,00
E	0,16	72,02	24,06	2,99	0,00
SE	-0,18	-551	196	-2,81	0,01
S	0,13	255	104	2,45	0,02

Pb-210

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,28
R kwadrat	0,08
Dopasowany R kwadrat	0,07
Błąd standardowy	8,44
Obserwacje	137

ANALIZA WARIANCJI					
	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	1	791	791	11	0,001
Resztkowy	135	9613	71		
Razem	136	10403			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		7,8	1,2	6,32	0,00
Suma opadu	0,27	0,06	0,02	3,33	0,00

Cs-137

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,41
R kwadrat	0,17
Dopasowany R kwadrat	0,15
Błąd standardowy	0,02
Obserwacje	136

ANALIZA WARIANCJI					
	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	3	0,015	0,0051	8,8	2,4E-05
Resztkowy	132	0,077	0,00058		
Razem	135	0,092			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		0,09	0,02	3,87	0,00
Wilgotność względna		-0,25	0,00028	-3,16	0,00
Suma opadu	0,33	0,00021	5,3E-05	4,01	0,00

K-40

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,40
R kwadrat	0,16
Dopasowany R kwadrat	0,14
Błąd standardowy	0,84
Obserwacje	137

ANALIZA WARIANCJI					
	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	4	18	4,5	6,4	9,7E-05
Resztkowy	132	94	0,71		
Razem	136	112			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		-0,36	0,32	-1,12	0,26
Temp. termometru suchego	0,33	0,04	0,01	3,17	0,00
N	0,23	2,25	0,77	2,92	0,00
NE	0,24	0,43	0,18	2,38	0,02
SW	0,34	0,67	0,20	3,32	0,00

Na-22

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,68
R kwadrat	0,47
Dopasowany R kwadrat	0,45
Błąd standardowy	0,0090
Obserwacje	137

ANALIZA WARIANCJI	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	5	0,0093	0,0019	23	1,4E-16
Resztkowy	131	0,011	8,1E-05		
Razem	136	0,019			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		-0,0034	0,0025	-1,33	0,19
Temp. termometru suchego	0,21	0,00033	0,00012	2,82	0,01
Suma opadu	0,47	0,00014	2,2E-05	6,42	0,00
N	0,19	0,0232	0,0085	2,74	0,01
NE	0,18	0,0048	0,0018	2,66	0,01
S	0,18	0,050	0,019	2,70	0,01

Korelacje wzajemne depozycji aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym z wybranymi czynnikami meteorologicznymi

Depozycja aktywności		Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40	Pu-239+240
Zachmurzenie ogólne	R	0,13	-0,16	-0,07	-0,08	0,00	-0,20
	p	0,13	0,07	0,45	0,36	0,99	0,08
Temp. termometru suchego	R	0,09	0,57	0,24	0,42	0,17	0,40
	p	0,30	0,00	0,00	0,00	0,05	0,00
Wilgotność względna	R	0,00	-0,27	-0,24	-0,25	-0,07	-0,43
	p	0,97	0,00	0,01	0,00	0,40	0,00
Ciśnienie na p.m.	R	-0,16	-0,36	-0,23	-0,32	-0,04	-0,19
	p	0,07	0,00	0,01	0,00	0,65	0,11
Suma opadu	R	0,27	0,79	0,30	0,58	0,16	0,25
	p	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,03
Opady ciekłe	R	0,24	0,81	0,26	0,58	0,19	0,30
	p	0,01	0,00	0,00	0,00	0,03	0,01
Opady śniegowe i lodowe	R	0,06	-0,13	0,10	-0,05	-0,13	-0,22
	p	0,48	0,13	0,26	0,60	0,13	0,06
N	R	0,10	0,25	0,29	0,40	0,26	0,26
	p	0,24	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03
NE	R	0,00	-0,19	0,04	-0,02	0,06	-0,20
	p	0,96	0,03	0,62	0,78	0,46	0,09
E	R	-0,07	0,10	0,12	0,02	-0,09	0,13
	p	0,39	0,26	0,16	0,84	0,33	0,28
SE	R	0,03	0,30	0,21	0,36	0,10	0,36
	p	0,72	0,00	0,02	0,00	0,23	0,00
S	R	0,02	0,15	0,02	0,24	0,05	-0,02
	p	0,81	0,08	0,83	0,01	0,58	0,87
SW	R	-0,04	-0,21	-0,09	-0,18	0,11	-0,15
	p	0,69	0,02	0,31	0,04	0,22	0,19
W	R	-0,07	0,14	-0,01	-0,01	-0,12	-0,07
	p	0,45	0,10	0,94	0,91	0,18	0,56
NW	R	0,01	0,24	0,14	0,29	0,01	0,13
	p	0,93	0,01	0,10	0,00	0,92	0,27

Model regresji wielokrotnej zależności stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym od wybranych czynników meteorologicznych

Pb-210

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,35
R kwadrat	0,12
Dopasowany R kwadrat	0,10
Błąd standardowy	144
Obserwacje	95

ANALIZA WARIANCJI	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	2	261999	130999	6,3	0,003
Resztkowy	92	1902078	20675		
Razem	94	2164077			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		361	41	8,77	0,00
Temp. termometru suchego	0,26	-4,9	1,9	-2,54	0,01
W	0,24	-109	43	-2,55	0,01

Be-7

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,64
R kwadrat	0,41
Dopasowany R kwadrat	0,39
Błąd standardowy	660
Obserwacje	95

ANALIZA WARIANCJI	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	3	27684835	9228278	21	1,7E-10
Resztkowy	91	39606250	435234		
Razem	94	67291085			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		6193	841	7,36	0,00
Wilgotnosc względna	-0,51	-60	10	-5,99	0,00
Suma opadu	0,45	9,2	1,7	5,45	0,00
NW	-0,26	-2059	642	-3,21	0,00

K-40

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,39
R kwadrat	0,15
Dopasowany R kwadrat	0,13
Błąd standardowy	21
Obserwacje	95

ANALIZA WARIANCJI	Df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	2	7046	3523	8	0,0006
Resztkowy	92	40374	439		
Razem	94	47420			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		-1589	544	-2,92	0,00
Cisnienie na p.m.	0,29	1,60	0,53	2,99	0,00
NW	-0,23	-49	18	-2,67	0,01

Na-22

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,29
R kwadrat	0,08
Dopasowany R kwadrat	0,07
Błąd standardowy	0,29
Obserwacje	95

ANALIZA WARIANCJI	Df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	1	0,72	0,72	8,6	0,004
Resztkowy	93	7,8	0,08		
Razem	94	8,5			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		0,54	0,05	10,77	0,00
Suma opadu	0,27	-0,002	0,00	-2,93	0,00

Cs-137

Statystyki regresji	
Wielokrotność R	0,27
R kwadrat	0,08
Dopasowany R kwadrat	0,07
Błąd standardowy	0,60
Obserwacje	94

ANALIZA WARIANCJI	df	SS	MS	F	Istotność F
Regresja	1	2,68	2,68	7,5	0,008
Resztkowy	92	32	0,36		
Razem	93	36			

	Współczynniki ustandaryzowane	Współczynniki	Błąd standardowy	t Stat	Wartość-p
Przecięcie		0,98	0,10	9,35	0,00
Suma opadu		-0,30	0,0015	-2,73	0,01

Korelacje wzajemne stężenia aktywności izotopów promieniotwórczych zawartych w całkowitym opadzie atmosferycznym z wybranymi czynnikami meteorologicznymi

Stężenie aktywności		Pb-210	Be-7	Cs-137	Na-22	K-40	Pu-239+240
Zachmurzenie ogólne	R	0,13	-0,38	-0,19	-0,20	0,00	-0,12
	p	0,21	0,00	0,08	0,06	0,97	0,30
Temp. termometru suchego	R	-0,25	0,55	-0,04	0,01	-0,13	0,06
	p	0,02	0,00	0,72	0,90	0,23	0,60
Wilgotność względna	R	0,06	-0,47	-0,17	0,01	0,13	-0,27
	p	0,57	0,00	0,10	0,94	0,23	0,02
Ciśnienie na p.m.	R	0,03	-0,24	0,10	0,15	0,30	0,07
	p	0,81	0,02	0,36	0,16	0,00	0,57
Suma opadu	R	-0,29	0,40	-0,30	-0,27	-0,31	-0,24
	p	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,04
Opady ciekłe	R	-0,31	0,44	-0,28	-0,25	-0,27	-0,19
	p	0,00	0,00	0,01	0,02	0,01	0,11
Opady śniegowe i lodowe	R	0,09	-0,14	-0,07	-0,06	-0,11	-0,22
	p	0,41	0,18	0,53	0,57	0,28	0,06
N	R	-0,11	0,12	0,00	-0,15	-0,09	-0,09
	p	0,30	0,26	0,97	0,15	0,38	0,43
NE	R	0,22	-0,08	0,19	0,06	0,10	-0,05
	p	0,04	0,44	0,07	0,56	0,36	0,65
E	R	-0,04	0,28	0,12	0,12	-0,04	0,10
	p	0,69	0,01	0,27	0,26	0,67	0,42
SE	R	-0,15	0,34	0,04	-0,12	-0,11	0,04
	p	0,16	0,00	0,69	0,25	0,31	0,72
S	R	-0,07	0,07	0,00	-0,10	-0,08	-0,11
	p	0,49	0,48	0,98	0,35	0,44	0,35
SW	R	0,11	-0,32	-0,07	-0,16	0,14	0,04
	p	0,32	0,00	0,52	0,12	0,19	0,76
W	R	-0,24	0,03	-0,11	-0,05	-0,20	-0,05
	p	0,02	0,81	0,29	0,66	0,06	0,69
NW	R	-0,21	0,05	-0,07	-0,11	-0,24	-0,04
	p	0,04	0,61	0,51	0,29	0,02	0,77

2. Skrypty funkcji zastosowanych w FFT

2.1. Funkcja obliczająca Szybką Transformatę Fouriera

```
function [P1, Q1, df] = countFft(x, T)
%x - input vector
%T - sampling period [s]

x = detrend(x); %remove trend
Fs = 1/T; %sampling frequency [Hz]
L = length(x); %signal len
w = hanning(L)'; %w - window
sw = mean(w); %amplitude scaling factor
x2 = x.*w; %apply window

Lp = 14610; %expected signal length
x3 = [x2 zeros(1,Lp-L)]; %zero padding

Y = fft(x3); %count fft
P2 = abs(Y)/L; %amplitude, scaled by original signal length
P2(2:end-1) = 2*P2(2:end-1)/sw; %amplitude scaled by 2 and the applied window weight
Q2 = angle(Y); %phase angles

P1 = P2(1:Lp/2+1); %left half of the spectrum
Q1 = Q2(1:Lp/2+1); %left half of the spectrum
df = Fs/Lp; %frequency resolution
```

2.2. Funkcja lokalizująca dominujące częstotliwości na widmie amplitudowym

```
function [locs] = peaksFft(P, w)
%P -fft amplitudes
%w - weight threshold
m1 = max(P);
m2 = min(P);
threshold = (m1-m2)*w;
[pks,locs,w,p] = findpeaks(P,'MinPeakProminence',threshold);
```

2.3. Funkcja wyznaczająca składowe szeregu czasowego

```
function [] = countAndPlotFft(x, T, izoName, measureName, unitName)
%x - the serie
%T - sampling period [s]

x = x';
x = filloutliers(x,'spline');
[P1, Q1, df] = countFft(x,T);
[locs] = peaksFft(P1, 0.6);
t = T*(0:length(x)-1); %times
f = df*(0:length(P1)-1); %frequencies

%plot fft and selected peaks
fig1 = figure('Position', [10 10 1200 400]);
plot(f,P1)
hold on
for i = locs
    p = plot(f(i),P1(i),'ro');
    dcm_obj = datacursormode();
    createDatatip(dcm_obj, p, [f(i),P1(i)]);
end
desc = strcat(izoName, {' '}, measureName, ' - dziedzina częstotliwości');
title(desc)
xlabel('f [Hz]')
ylabel('|A|')
hold off

%plot signal and components
xTrend = x - detrend(x);
linComp = polyfit(t,xTrend,1);
fig2 = figure('Position', [10 500 1200 400]);
colormap(lines)
plot(t, x, 'g', 'DisplayName','Sygnał oryginalny');
hold on
%linear component
desc = strcat('Składowa liniowa: [a=', num2str(linComp(1),'%4.3e'), ' b=',
num2str(linComp(2),'%4.3e'), ' ]');
plot(t, xTrend,'--','DisplayName',desc)
%periodical components
ss = xTrend;
for i = locs
    s = P1(i)*cos(2*pi*f(i)*t+Q1(i));
    desc = strcat('Składowa okresowa: [A=', num2str(P1(i),'%4.3e'), ' f=',
num2str(f(i),'%4.3e'), ' \phi=',num2str(Q1(i),'%4.3e'), ' ]');
    plot(t, s + xTrend,'--','DisplayName', desc);
    ss = ss + s;
end
if length(locs) > 1
    plot(t, ss,'--','DisplayName','Suma składowych');
end
legend
desc = strcat(izoName, {' '}, measureName, ' - dziedzina czasu');
title(desc)
xlabel('t [s]')
desc = strcat(measureName, ' [', unitName, ']');
ylabel(desc)
hold off

desc = strcat('plot_', izoName, '_', measureName, '_frequency_domain');
saveas(fig1, desc, 'png');
desc = strcat('plot_', izoName, '_', measureName, '_time_domain');
saveas(fig2, desc, 'png');
close(fig1);
close(fig2);
```

3. Wyniki testów Kruskala Wallisa zależności wyników pomiarów od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza.

Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzanego stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza

Be-7 C vs. Filtr					
'Source'	'SS'	'df'	'MS'	'Chi-sq'	'Prob>Chi-sq'
'Groups'	57006	2	28503	1,93	0,38
'Error'	17496684	592	29555		
'Total'	17553690	594			
Be-7 C vs. Detektor					
'Groups'	315199	3	105066	10,67	0,01
'Error'	17238491	591	29168		
'Total'	17553690	594			
Be-7 MDC vs. Filtr					
'Groups'	3930415	2	1965207	133,00	0,00
'Error'	13623275	592	23012		
'Total'	17553690	594			
Be-7 MDC vs. Detektor					
'Groups'	583536	3	194512	19,75	0,00
'Error'	16970154	591	28714		
'Total'	17553690	594			

Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności Be-7 od rodzaju detektora z pominięciem wyników dla detektora nr 4

Be-7 D vs. Detektor bez detektora 4					
'Groups'	155257	2	77628	5,29	0,07
'Error'	17222015	590	29190		
'Total'	17377272	592			

Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Pb-210 od rodzaju detektora i konfiguracji filtrów powietrza

Pb-210 C vs. Filtr					
'Source'	'SS'	'df'	'MS'	'Chi-sq'	'Prob>Chi-sq'
'Groups'	469384	2	234692	15,88	0,00
'Error'	17084306	592	28859		
'Total'	17553690	594			
Pb-210 C vs. Detektor					
'Groups'	2188658	3	729553	74,06	0,00
'Error'	15365032	591	25998		
'Total'	17553690	594			
Pb-210 MDC vs. Filtr					
'Groups'	2879544	2	1439772	97,44	0,00
'Error'	14674145	592	24787		
'Total'	17553690	594			
Pb-210 MDC vs. Detektor					
'Groups'	4270885	3	1423628	144,52	0,00
'Error'	13282805	591	22475		
'Total'	17553690	594			

Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności K-40 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza

K-40 C vs. Filtr					
'Source'	'SS'	'df'	'MS'	'Chi-sq'	'Prob>Chi-sq'
'Groups'	72191	2	36095	2,45	0,29
'Error'	17393142	591	29430		
'Total'	17465333	593			
K-40 C vs. Detektor					
'Groups'	340049	3	113350	11,55	0,01
'Error'	17125284	590	29026		
'Total'	17465333	593			
K-40 MDC vs. Filtr					
'Groups'	7099359	2	3549679	241,04	0,00
'Error'	10365974	591	17540		
'Total'	17465333	593			
K-40 MDC vs. Detektor					
'Groups'	2022047	3	674016	68,65	0,00
'Error'	15443285	590	26175		
'Total'	17465333	593			

Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Cs-137 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza

Cs-137 C vs. Filtr					
'Source'	'SS'	'df'	'MS'	'Chi-sq'	'Prob>Chi-sq'
'Groups'	1184119	2	592060	40,07	0,00
'Error'	16369569	592	27651		
'Total'	17553689	594			
Cs-137 C vs. Detektor					
'Groups'	1333320	5	266664	45,12	0,00
'Error'	16220368	589	27539		
'Total'	17553689	594			
Cs-137 MDC vs. Filtr					
'Groups'	10287989	2	5143994	348,14	0,00
'Error'	7265699	592	12273		
'Total'	17553688	594			
Cs-137 MDC vs. Detektor					
'Groups'	2958355	5	591671	100,11	0,00
'Error'	14595333	589	24780		
'Total'	17553688	594			

Wynik testu Kruskala Wallisa zależności rozkładów stężenia aktywności i minimalnego mierzalnego stężenia aktywności Na-22 od rodzaju detektora i rodzaju konfiguracji filtrów powietrza

Na-22 D vs. Filtr					
'Source'	'SS'	'df'	'MS'	'Chi-sq'	'Prob>Chi-sq'
'Groups'	2606890	2	1303445	88,21	0,00
'Error'	14946793	592	25248		
'Total'	17553683	594			
Na-22 D vs. Detektor					
'Groups'	1907573	3	635858	64,55	0,00
'Error'	15646110	591	26474		
'Total'	17553683	594			
Na-22 MDD vs. Filtr					
'Groups'	6518375	2	3259187	220,58	0,00
'Error'	11035310	592	18641		
'Total'	17553685	594			
Na-22 MDD vs. Detektor					
'Groups'	2803603,741	3	934534,5804	94,87128329	1,96778E-20
'Error'	14750081,26	591	24957,83631		
'Total'	17553685	594			

4. Procedura radiochemicznego wydzielenia izotopów plutonu z próbek aerozoli atmosferycznych i próbek całkowitego opadu atmosferycznego

Pełny opis zastosowanej procedury radiochemicznej.

- A. Spopielenie próbek
 - A1. Umieszczenie próbek w porcelanowych parownicach
 - A2. Trzykrotne spopielenie próbek w piecu muflowym w temperaturze 600°C przez 12h
 - A3. Po każdym spopieleniu dokładne przemieszanie próbek za pomocą jednorazowych łyżeczek plastikowych
 - A4. Po procesie spopielenia przeniesienie próbek do zlewek teflonowych o pojemności 250 ml przy pomocy wody dejonizowanej i 1 M kwasu HNO₃
- B. Dodanie do próbek znacznika promieniotwórczego Pu-242
- C. Mineralizacja próbek
 - C1. Dodanie do próbek po 50 ml stężonego kwasu fluorowodorowego HF (ok. 40%, 22,6 M), gotowanie 4h pod przykryciem i następnie odparowanie do sucha
 - C2. Trzykrotne dodanie do próbek po 50 ml stężonego kwasu azotowego HNO₃ (65%, 14,4 M), gotowanie 1h pod przykryciem i następnie każdorazowe odparowanie do sucha
 - C3. Dodanie do próbek po 50 ml kwasu HCl (20%, 8M) i zagotowanie pod przykryciem
 - C4. Po ustaniu procesu pienienia dodanie do próbek po 2 g kwasu H₃BO₃, zagotowanie pod przykryciem i następnie odparowanie do sucha
 - C5. Dodanie do próbek po 50 ml stężonego kwasu azotowego HNO₃, gotowanie 1h pod przykryciem, odparowanie do objętości ok. 10 ml
 - C6. Dodanie do próbek po 100 ml wody dejonizowanej, gotowanie 1h pod przykryciem i odstawienie do ostygnięcia, uzyskanie próbek w postaci roztworu 1M HNO₃
 - C7. Przesączenie uzyskanych roztworów przez jakościowe sączone saszki bibułowe do szklanych zlewek o objętości 250 ml
- D. Ustalenie jonów plutonu na +4 stopniu utlenienia
 - D1. Dodanie do każdej zlewki mieszadła magnetycznego powleczzonego teflonem
 - D2. Sprawdzenie zawartości jonów Fe³⁺ w próbkach przy pomocy reakcji charakterystycznej z rodankiem amonu NH₄SCN, przy braku obecności jonów żelaza dodanie do próbek po kilka kropel chlorku żelaza FeCl₃
 - D3. Ogrzanie próbek na płycie grzewczej i dodanie po 1 ml hydratu hydrazyny (40%)
 - D4. Gotowanie ok. 20 min próbek pod przykryciem, podczas którego jony Fe³⁺ redukują się do jonów Fe²⁺

- D5. Przeprowadzenie roztworów 1M kwasu HNO_3 zawierających zmineralizowane próbki do postaci roztworów 4M HNO_3 poprzez dodanie do próbek po 30 ml stężonego HNO_3
 - D6. Gotowanie próbek pod przykryciem, aż nastąpi rozłożenie się hydrazyny (zmiana koloru roztworów na żółty), jony żelaza powracając do postaci Fe^{3+} powodują redukcję jonów plutonu $\text{Pu}^{6+,5+,4+}$ do Pu^{3+}
 - D7. Ostudzenie próbek i dodanie po 3 g NaNO_2 , co powoduje zmianę koloru roztworów na zielony
 - D8. Gotowanie próbek pod przykryciem, aż przestaną się wydzielać brązowe dymy (tlenki azotu NO_2), a kolor roztworów znów zrobi się żółty; podczas tej procedury jony plutonu Pu^{3+} zmieniają stopień utlenienia z 3+ na 4+
 - D9. Przeprowadzenie roztworów 4M HNO_3 do postaci roztworów 8M HNO_3 poprzez dodanie stężonego HNO_3 i wody dejonizowanej, w takich proporcjach żeby otrzymać finalnie 150-250 ml roztworu 8M HNO_3
- E. Chromatografia jonowymienna
- E1. Po ostudzeniu próbek przesączenie ich przez sączi bibułowe do szklanych zlewek o objętości 250 ml
 - E2. Wypełnienie polietylenowych rurek o średnicy 4 mm zakończonych teflonowym dyskiem filtracyjnym (zwanych dalej kolumnami) żywicą jonowymienną Dowex 1x8 Cl- 250 mesh
 - E3. Zamontowanie na stanowisku do chromatografii zestawów składających się ze strzykawkę 50 ml, tłoczków, adapterów oraz kolumn wypełnionych żywicą Dowex 1
 - E4. Aktywacja kolumny – przepuszczenie przez każdą kolumnę 25 ml kwasu 8M HNO_3 , co powoduje zmianę formy jonitu z chlorkowej na azotanową
 - E5. Przepuszczenie przez kolumny próbek, co powoduje zatrzymanie na kolumnach frakcji zawierających m.in. tor i pluton, w przesączu pozostaje natomiast frakcja zawierająca ameryk i pierwiastki ziem rzadkich
 - E6. Przepłukanie każdej z kolumn 25 ml 8M HNO_3
 - E7. Przepuszczenie przez każdą kolumnę 60 ml stężonego kwasu solnego HCl (34 %, 12 M) w celu wymycia z kolumn frakcji zawierających tor
 - E8. Przepuszczenie przez każdą z kolumn 25 ml roztworu 0,1M HF z 0,1M HCl w celu wymycia frakcji zawierających pluton
- F. Przygotowanie źródeł alfa promieniotwórczych
- F2. Dodanie do otrzymanych roztworów po 50 μ l roztworu NdCl_3 (zawierającego 50 μ g Nd) oraz po 5 ml stężonego kwasu HF
 - F3. Odczekanie ok.1h, podczas której narasta sieć mikrokryształków NdF_3 , w której pułapkowane są jony plutonu
 - F4. Przesączenie uzyskanych mikrozwiesin przez sączi membranowe o średnicy porów 0,1 μ m przy użyciu pompki wodnej
 - F5. Przyklejenie sączków do stalowych podkładek i umieszczenie ich polistyrenowych szalkach Petriego

5. Wyniki pomiarów

Poniżej przedstawiono wyniki pomiarowe odpowiednio przygotowane (zgodnie z algorytmami opisanymi w punkcie 2.5 rozdziału II) wykorzystane do analiz. Wyniki poniżej limitu detekcji można wyróżnić na podstawie wartości mierzonej wielkości i niepewności (niesymetryczne niepewności lub wartość mierzonej wielkości równa niepewnościom).

Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych tygodniowych próbek aerozoli atmosferycznych. Stężenie aktywności [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$].

Rok	Nr	K-40			Na-22			Cs-137			Pb-210			Be-7		
		C	dC +	dC -	C	dC +	dC -	C	dC +	dC -	C	dC +	dC -	C	dC +	dC -
2005	1	15,2	1,7	1,7	0,24	0,08	0,08	0,79	0,09	0,09	170	12	12	3570	253	253
2005	2	32,9	3,2	3,2	0,49	0,11	0,11	1,96	0,18	0,18	391	28	28	3417	243	243
2005	3	54,1	5,3	5,3	0,34	0,14	0,34	3,52	0,33	0,33	256	19	19	3629	259	259
2005	4	34,1	3,6	3,6	0,30	0,13	0,30	3,27	0,28	0,28	400	29	29	2467	176	176
2005	5	18,4	2,4	2,4	0,19	0,08	0,19	1,96	0,18	0,18	248	18	18	2459	175	175
2005	6	92,0	8,0	8,0	0,88	0,25	0,25	5,02	0,43	0,43	735	53	53	8070	573	573
2005	7	15,4	2,4	2,4	0,14	0,06	0,14	1,96	0,19	0,19	242	17	17	1185	85	85
2005	8	30,1	2,9	2,9	0,19	0,08	0,19	2,03	0,18	0,18	508	36	36	1609	115	115
2005	9	42,4	4,2	4,2	0,33	0,14	0,33	2,76	0,26	0,26	307	22	22	4760	340	340
2005	10	15,6	1,9	1,9	0,20	0,08	0,20	0,94	0,11	0,11	338	24	24	3163	226	226
2005	11	33,2	3,5	3,5	0,51	0,16	0,16	1,58	0,17	0,17	230	17	17	4568	326	326
2005	12	49,8	4,4	4,4	0,89	0,17	0,17	2,57	0,23	0,23	386	28	28	7310	519	519
2005	13	49,9	4,0	4,0	0,67	0,10	0,10	3,95	0,30	0,30	282	20	20	6950	492	492
2005	14	54,4	4,4	4,4	0,95	0,13	0,13	2,66	0,22	0,22	318	23	23	7494	530	530
2005	15	61,2	5,0	5,0	1,39	0,20	0,20	2,38	0,21	0,21	780	55	55	10100	716	716
2005	16	40,2	3,2	3,2	0,58	0,10	0,10	2,13	0,18	0,18	709	50	50	6270	444	444
2005	17	20,0	1,9	1,9	0,65	0,09	0,09	1,25	0,12	0,12	240	17	17	5733	406	406
2005	18	16,0	2,4	2,4	0,61	0,15	0,15	0,59	0,13	0,13	252	19	19	4613	327	327
2005	19	25,5	2,3	2,3	0,44	0,07	0,07	0,95	0,10	0,10	131	9	9	3569	253	253
2005	20	2,0	1,7	1,7	0,64	0,06	0,06	1,49	0,09	0,09	189	10	10	5369	283	283
2005	21	29,6	2,5	2,5	0,84	0,10	0,10	2,02	0,16	0,16	247	18	18	7169	507	507
2005	22	21,8	2,1	2,1	0,88	0,11	0,11	0,89	0,10	0,10	146	11	11	5663	401	401
2005	23	11,5	1,5	1,5	0,51	0,09	0,09	0,63	0,08	0,08	106	8	8	4198	297	297
2005	24	22,4	2,1	2,1	0,92	0,11	0,11	0,77	0,08	0,08	321	23	23	6948	492	492
2005	25	34,2	2,9	2,9	0,79	0,10	0,10	1,77	0,15	0,15	201	14	14	6883	487	487
2005	26	29,4	2,6	2,6	0,78	0,11	0,11	1,00	0,10	0,10	181	13	13	6287	445	445
2005	27	19,5	1,8	1,8	0,73	0,09	0,09	0,90	0,09	0,09	207	15	15	5521	391	391
2005	28	23,3	2,2	2,2	1,15	0,13	0,13	1,10	0,11	0,11	289	21	21	8778	621	621
2005	29	15,7	1,6	1,6	0,53	0,08	0,08	0,47	0,07	0,07	506	36	36	4880	345	345
2005	30	28,5	3,3	3,3	0,87	0,17	0,17	0,98	0,15	0,15	994	71	71	6714	476	476
2005	31	20,2	2,0	2,0	0,56	0,09	0,09	0,52	0,07	0,07	159	12	12	4530	320	320
2005	32	16,0	1,6	1,6	0,43	0,07	0,07	0,60	0,07	0,07	147	11	11	3899	276	276

2005	33	19,2	1,6	1,6	0,29	0,05	0,05	1,10	0,09	0,09	365	26	26	3191	226	226
2005	34	27,2	2,4	2,4	0,53	0,10	0,10	0,70	0,08	0,08	797	56	56	6267	443	443
2005	35	46,2	2,8	2,8	0,74	0,08	0,08	1,12	0,08	0,08	1106	57	57	7704	392	392
2005	36	65,2	5,0	5,0	0,95	0,13	0,13	1,54	0,14	0,14	1414	100	100	9142	647	647
2005	37	27,6	2,4	2,4	0,63	0,09	0,09	0,92	0,09	0,09	679	48	48	4344	307	307
2005	38	32,5	1,9	1,9	0,42	0,09	0,09	3,41	0,26	0,26	1015	72	72	5527	391	391
2005	39	37,5	3,0	3,0	0,35	0,07	0,07	1,27	0,11	0,11	1131	80	80	3937	279	279
2005	40	66,9	5,1	5,1	0,29	0,07	0,07	4,56	0,34	0,34	2045	145	145	4472	316	316
2005	41	74,1	5,9	5,9	0,21	0,09	0,21	3,38	0,28	0,28	1677	119	119	4489	318	318
2005	42	55,4	5,0	5,0	0,22	0,09	0,22	2,14	0,22	0,22	1042	74	74	3017	214	214
2005	43	40,7	3,6	3,6	0,48	0,11	0,11	2,05	0,19	0,19	684	49	49	4614	327	327
2005	44	94,5	7,6	7,6	0,29	0,12	0,29	3,15	0,28	0,28	1534	109	109	5168	366	366
2005	45	52,1	4,8	4,8	0,14	0,06	0,14	1,61	0,19	0,19	1467	104	104	2131	151	151
2005	46	46,4	7,2	7,2	0,49	0,20	0,49	2,41	0,41	0,41	953	69	69	2374	169	169
2005	47	41,0	3,8	3,8	0,19	0,08	0,19	1,47	0,16	0,16	885	63	63	1257	89	89
2005	48	44,6	4,4	4,4	0,24	0,10	0,24	2,39	0,24	0,24	769	55	55	2400	170	170
2005	49	24,4	2,7	2,7	0,17	0,07	0,17	1,67	0,16	0,16	673	48	48	2576	182	182
2005	50	27,9	2,9	2,9	0,35	0,09	0,09	1,17	0,13	0,13	408	29	29	2677	190	190
2005	51	28,7	2,8	2,8	0,09	0,04	0,09	1,82	0,17	0,17	446	32	32	2004	142	142
2005	52	38,4	3,6	3,6	0,20	0,08	0,20	2,55	0,23	0,23	837	59	59	1685	119	119
2006	1	19,1	1,8	1,8	0,09	0,04	0,09	2,18	0,18	0,18	982	70	70	2056	146	146
2006	2	32,8	2,9	2,9	0,28	0,08	0,08	3,40	0,27	0,27	666	47	47	2574	182	182
2006	3	40,7	3,8	3,8	0,25	0,10	0,25	3,81	0,31	0,31	1268	90	90	2362	167	167
2006	4	31,1	2,1	2,1	0,23	0,06	0,13	2,56	0,17	0,17	932	50	50	2353	118	118
2006	5	21,4	1,9	1,9	0,21	0,05	0,05	1,30	0,11	0,11	596	42	42	2344	166	166
2006	6	16,9	2,0	2,0	0,11	0,05	0,11	1,29	0,13	0,13	653	46	46	1303	92	92
2006	7	18,5	1,9	1,9	0,11	0,05	0,11	1,19	0,12	0,12	369	26	26	1547	110	110
2006	8	10,5	1,3	1,3	0,10	0,04	0,10	1,41	0,13	0,13	556	39	39	1938	137	137
2006	9	8,5	1,3	1,3	0,14	0,06	0,14	1,14	0,11	0,11	243	17	17	1864	132	132
2006	10	21,9	2,3	2,3	0,18	0,07	0,18	1,19	0,13	0,13	398	28	28	2914	206	206
2006	11	11,3	1,0	1,0	0,19	0,03	0,03	2,48	0,18	0,18	1031	73	73	2488	176	176
2006	12	19,7	1,9	1,9	0,36	0,07	0,07	1,11	0,11	0,11	288	21	21	3189	226	226
2006	13	19,7	1,3	1,3	0,42	0,05	0,05	1,08	0,08	0,08	244	13	13	3492	175	175
2006	14	19,7	1,7	1,7	0,48	0,07	0,07	1,06	0,10	0,10	200	14	14	3796	268	268
2006	15	10,5	0,9	0,9	0,34	0,04	0,04	0,50	0,04	0,04	187	13	13	3028	214	214
2006	16	14,1	1,1	1,1	0,28	0,04	0,04	0,63	0,06	0,06	221	16	16	2325	164	164
2006	17	12,3	1,1	1,1	0,39	0,06	0,06	0,80	0,07	0,07	246	17	17	2605	184	184
2006	18	17,4	1,4	1,4	0,63	0,06	0,06	5,37	0,39	0,39	382	27	27	4948	350	350
2006	19	18,3	1,5	1,5	0,70	0,07	0,07	1,58	0,12	0,12	263	19	19	5400	382	382
2006	20	12,5	1,1	1,1	0,53	0,06	0,06	0,92	0,08	0,08	186	13	13	4280	303	303
2006	21	11,6	1,0	1,0	0,57	0,06	0,06	0,56	0,05	0,05	165	12	12	4128	292	292
2006	22	7,6	0,8	0,8	0,18	0,04	0,04	0,36	0,04	0,04	99	7	7	2345	166	166
2006	23	11,0	0,8	0,8	0,44	0,04	0,04	0,50	0,04	0,04	93	5	5	3411	179	179
2006	24	14,4	1,2	1,2	0,69	0,07	0,07	0,64	0,06	0,06	88	6	6	4478	317	317
2006	25	18,2	1,5	1,5	0,72	0,08	0,08	0,47	0,06	0,06	100	7	7	4658	330	330

2006	26	10,4	1,1	1,1	0,51	0,07	0,07	0,89	0,08	0,08	88	6	6	4191	297	297
2006	27	20,6	1,7	1,7	0,66	0,08	0,08	0,82	0,08	0,08	106	8	8	6130	434	434
2006	28	15,4	1,5	1,5	0,45	0,07	0,07	0,88	0,09	0,09	111	8	8	4849	343	343
2006	29	22,2	1,8	1,8	0,39	0,06	0,06	1,39	0,11	0,11	97	7	7	4154	294	294
2006	30	10,7	0,9	0,9	0,33	0,04	0,04	0,50	0,05	0,05	83	6	6	3285	232	232
2006	31	6,7	0,6	0,6	0,14	0,03	0,03	0,14	0,02	0,02	48	3	3	1760	125	125
2006	32	7,5	0,8	0,8	0,26	0,04	0,04	0,37	0,04	0,04	49	4	4	1851	131	131
2006	33	12,5	1,1	1,1	0,21	0,04	0,04	0,48	0,05	0,05	98	7	7	2945	208	208
2006	34	10,1	0,7	0,7	0,17	0,03	0,03	0,35	0,03	0,03	75	4	4	2454	125	125
2006	35	7,7	0,8	0,8	0,14	0,03	0,03	0,22	0,03	0,03	52	4	4	1962	139	139
2006	36	12,4	1,1	1,1	0,18	0,03	0,03	0,56	0,05	0,05	54	4	4	2424	172	172
2006	37	31,4	2,4	2,4	0,18	0,04	0,04	0,64	0,06	0,06	130	9	9	3669	260	260
2006	38	25,4	1,6	1,6	0,17	0,03	0,03	0,62	0,05	0,05	120	7	7	3301	183	183
2006	39	19,4	1,1	1,1	0,16	0,03	0,03	0,61	0,04	0,04	109	6	6	2933	149	149
2006	40	13,5	1,2	1,2	0,15	0,03	0,03	0,59	0,05	0,05	98	7	7	2565	181	181
2006	41	25,4	2,1	2,1	0,13	0,05	0,13	0,84	0,08	0,08	163	12	12	2589	183	183
2006	42	20,8	1,7	1,7	0,14	0,04	0,04	0,87	0,08	0,08	105	8	8	2695	191	191
2006	43	21,5	1,7	1,7	0,14	0,04	0,04	1,01	0,08	0,08	86	6	6	2682	190	190
2006	44	14,7	1,0	1,0	0,17	0,03	0,03	0,81	0,05	0,05	77	4	4	3028	153	153
2006	45	7,9	0,9	0,9	0,20	0,05	0,05	0,61	0,06	0,06	69	5	5	3375	239	239
2006	46	14,8	1,5	1,5	0,17	0,05	0,05	0,82	0,08	0,08	68	5	5	1181	84	84
2006	47	27,2	2,4	2,4	0,11	0,05	0,11	1,36	0,13	0,13	206	15	15	1157	82	82
2006	48	20,5	2,0	2,0	0,10	0,04	0,10	1,08	0,11	0,11	112	8	8	790	56	56
2006	49	20,0	2,0	2,0	0,31	0,07	0,07	1,33	0,12	0,12	141	10	10	1685	119	119
2006	50	6,7	0,8	0,8	0,06	0,02	0,06	0,63	0,06	0,06	38	3	3	784	56	56
2006	51	25,1	2,3	2,3	0,37	0,09	0,09	2,18	0,19	0,19	124	9	9	3274	232	232
2006	52	15,4	1,5	1,5	0,10	0,04	0,10	0,92	0,09	0,09	118	8	8	1870	132	132
2007	1	6,4	5,7	5,7	0,15	0,06	0,15	1,26	0,35	0,35	112	28	28	1486	11	11
2007	2	4,1	1,7	4,1	0,16	0,06	0,16	1,17	0,36	0,36	290	38	38	2433	16	16
2007	3	35,0	7,2	7,2	0,18	0,08	0,18	1,39	0,44	0,44	322	42	42	3775	21	21
2007	4	16,6	7,3	7,3	0,18	0,08	0,18	0,72	0,42	0,42	112	32	32	1996	15	15
2007	5	9,4	4,7	4,7	0,13	0,05	0,13	2,82	1,01	1,01	109	25	25	1687	11	11
2007	6	24,5	7,6	7,6	0,17	0,07	0,17	2,27	0,42	0,42	144	34	34	1742	13	13
2007	7	51,9	8,7	8,7	0,20	0,08	0,20	2,06	0,48	0,48	421	39	39	1192	12	12
2007	8	30,2	9,9	9,9	0,23	0,10	0,23	3,21	0,58	0,58	709	47	47	2654	20	20
2007	9	33,6	7,1	7,1	0,16	0,06	0,16	1,39	0,36	0,36	140	29	29	1445	12	12
2007	10	26,7	7,2	7,2	0,17	0,07	0,17	1,91	0,40	0,40	342	39	39	3831	21	21
2007	11	46,5	9,5	9,5	0,22	0,09	0,22	2,02	0,50	0,50	366	49	49	3167	22	22
2007	12	61,8	7,5	7,5	0,17	0,07	0,17	1,46	0,38	0,38	236	34	34	2519	16	16
2007	13	33,6	7,1	7,1	0,15	0,06	0,15	2,08	0,39	0,39	336	36	36	5952	24	24
2007	14	28,1	6,7	6,7	0,15	0,06	0,15	2,87	0,43	0,43	447	45	45	4805	20	20
2007	15	36,4	6,9	6,9	0,13	0,06	0,13	0,93	0,40	0,40	179	38	38	5094	21	21
2007	16	37,3	6,7	6,7	0,12	0,05	0,12	1,92	0,36	0,36	460	32	32	4847	19	19
2007	17	33,0	5,6	5,6	0,12	0,05	0,12	1,71	0,36	0,36	490	44	44	5363	21	21
2007	18	18,8	4,7	4,7	0,10	0,04	0,10	1,53	0,25	0,25	371	30	30	5028	18	18

2007	19	29,7	5,2	5,2	0,09	0,04	0,09	0,90	0,27	0,27	290	28	28	4285	16	16
2007	20	23,4	9,7	23,4	1,00	0,41	1,00	1,68	0,70	1,68	271	51	51	2775	199	199
2007	21	21,7	9,0	21,7	1,04	0,43	1,04	1,32	0,55	1,32	652	66	66	6961	494	494
2007	22	27,3	11,3	27,3	1,66	0,69	1,66	1,39	0,57	1,39	261	58	58	3574	256	256
2007	23	38,6	6,8	6,8	1,64	0,53	0,53	2,73	0,53	0,53	735	72	72	5258	278	278
2007	24	24,7	10,2	24,7	1,42	0,59	1,42	1,36	0,56	1,36	557	73	73	6942	493	493
2007	25	18,4	7,6	18,4	1,21	0,50	1,21	2,27	0,68	0,68	244	44	44	3608	257	257
2007	26	20,8	8,6	20,8	1,69	0,70	1,69	1,16	0,48	1,16	286	49	49	4667	332	332
2007	27	15,1	6,3	15,1	0,75	0,31	0,75	1,44	0,60	1,44	150	38	38	3292	235	235
2007	28	15,6	6,4	15,6	0,60	0,25	0,60	0,69	0,29	0,69	266	38	38	3495	248	248
2007	29	26,5	7,2	7,2	1,08	0,45	1,08	2,02	0,47	0,47	577	54	54	6514	461	461
2007	30	20,5	8,5	20,5	0,87	0,36	0,87	1,37	0,57	1,37	100	25	25	3549	252	252
2007	31	15,6	6,5	15,6	0,55	0,23	0,55	0,95	0,39	0,95	173	27	27	3050	217	217
2007	32	39,3	16,3	39,3	1,51	0,62	1,51	2,40	0,99	2,40	646	86	86	5092	364	364
2007	33	23,3	9,7	23,3	1,15	0,48	1,15	1,02	0,42	1,02	492	54	54	5166	366	366
2007	34	21,1	8,8	21,1	1,00	0,41	1,00	1,88	0,58	0,58	495	52	52	6068	430	430
2007	35	16,8	7,0	16,8	0,92	0,38	0,92	0,75	0,31	0,75	251	36	36	4523	321	321
2007	36	10,5	4,4	10,5	0,57	0,24	0,57	0,56	0,23	0,56	187	24	24	2424	172	172
2007	37	14,1	5,9	14,1	0,66	0,27	0,66	1,24	0,37	0,37	305	36	36	6230	441	441
2007	38	36,3	7,2	7,2	0,98	0,41	0,98	2,00	0,48	0,48	404	42	42	5540	392	392
2007	39	35,1	7,8	7,8	0,63	0,26	0,63	0,94	0,39	0,94	749	66	66	5363	380	380
2007	40	19,5	8,1	19,5	0,99	0,41	0,99	1,58	0,47	0,47	622	58	58	3996	284	284
2007	41	18,7	7,7	18,7	1,25	0,52	1,25	1,39	0,57	1,39	528	46	46	4502	320	320
2007	42	22,7	9,4	22,7	0,77	0,32	0,77	1,61	0,67	1,61	433	72	72	3311	236	236
2007	43	23,1	9,6	23,1	1,37	0,57	1,37	3,60	0,76	0,76	1068	96	96	2320	166	166
2007	44	28,1	11,6	28,1	1,62	0,67	1,62	4,13	1,07	1,07	374	100	100	2480	179	179
2007	45	20,8	8,6	20,8	0,72	0,30	0,72	1,59	0,66	1,59	169	44	44	2052	147	147
2007	46	34,8	14,4	34,8	1,69	0,70	1,69	1,84	0,76	1,84	330	96	96	1525	112	112
2007	47	38,7	11,5	11,5	1,15	0,48	1,15	1,94	0,58	0,58	454	50	50	1860	133	133
2007	48	25,8	10,7	25,8	1,57	0,65	1,57	1,72	0,71	1,72	305	58	58	2680	192	192
2007	49	32,8	13,6	32,8	1,37	0,57	1,37	1,74	0,72	1,74	403	67	67	2025	147	147
2007	50	31,3	13,0	31,3	1,58	0,66	1,58	6,91	1,35	1,35	581	66	66	1953	141	141
2007	51	38,9	9,2	9,2	1,39	0,57	1,39	3,13	0,63	0,63	616	67	67	5168	367	367
2007	52	39,9	9,0	9,0	0,70	0,29	0,70	1,90	0,56	0,56	745	64	64	2509	179	179
2008	1	27,1	11,2	27,1	1,46	0,60	1,46	3,08	0,99	0,99	1424	127	127	4442	317	317
2008	2	35,2	7,1	7,1	0,89	0,37	0,89	2,58	0,49	0,49	481	45	45	3425	243	243
2008	3	50,2	12,2	12,2	0,89	0,37	0,89	3,21	0,86	0,86	571	65	65	2453	176	176
2008	4	12,3	5,1	12,3	0,73	0,30	0,73	1,72	0,44	0,44	269	36	36	4012	285	285
2008	5	33,0	8,1	8,1	0,69	0,28	0,69	2,29	0,60	0,60	316	41	41	3461	246	246
2008	6	28,1	7,3	7,3	0,87	0,36	0,87	1,21	0,50	1,21	445	45	45	3021	215	215
2008	7	39,7	9,8	9,8	0,92	0,38	0,92	3,45	0,70	0,70	520	58	58	4696	334	334
2008	8	31,5	8,5	8,5	1,15	0,47	1,15	2,74	0,59	0,59	445	53	53	5348	380	380
2008	9	18,8	7,8	18,8	1,12	0,46	1,12	2,46	0,60	0,60	301	49	49	4493	319	319
2008	10	39,3	8,1	8,1	0,95	0,39	0,95	0,89	0,37	0,89	304	43	43	4830	343	343
2008	11	14,2	5,9	14,2	0,89	0,37	0,89	1,27	0,53	1,27	280	41	41	3637	259	259

2008	12	15,8	6,5	15,8	0,79	0,33	0,79	1,19	0,49	1,19	122	33	33	3185	227	227
2008	13	34,8	9,5	9,5	0,99	0,41	0,99	1,81	0,75	1,81	236	44	44	5763	410	410
2008	14	32,2	6,6	6,6	0,73	0,30	0,73	3,38	0,58	0,58	566	56	56	5534	392	392
2008	15	22,9	4,5	4,5	0,54	0,22	0,54	1,56	0,31	0,31	349	36	36	4934	350	350
2008	16	25,1	4,8	4,8	0,78	0,32	0,78	1,64	0,33	0,33	312	36	36	4023	285	285
2008	17	17,3	4,2	4,2	0,44	0,18	0,44	3,88	0,45	0,45	411	43	43	9123	646	646
2008	18	22,5	5,1	5,1	1,03	0,34	0,34	2,13	0,39	0,39	320	37	37	6132	434	434
2008	19	12,9	3,0	3,0	1,21	0,23	0,23	1,53	0,23	0,23	284	28	28	6068	429	429
2008	20	21,0	4,6	4,6	0,61	0,25	0,61	1,68	0,34	0,34	556	52	52	8408	595	595
2008	21	16,7	3,6	3,6	0,37	0,16	0,37	1,09	0,24	0,24	273	29	29	3190	226	226
2008	22	26,4	3,3	3,3	0,88	0,20	0,26	1,54	0,23	0,23	343	27	27	5467	297	297
2008	23	36,1	5,6	5,6	1,38	0,36	0,36	1,99	0,38	0,38	413	44	44	7744	548	548
2008	24	26,9	3,7	3,7	1,13	0,23	0,23	1,11	0,21	0,21	326	31	31	6562	464	464
2008	25	26,5	4,7	4,7	0,54	0,22	0,54	1,12	0,24	0,24	441	44	44	5758	408	408
2008	26	20,2	4,4	4,4	1,14	0,30	0,30	0,52	0,22	0,52	373	42	42	8779	621	621
2008	27	24,7	4,8	4,8	1,22	0,34	0,34	0,54	0,22	0,54	306	44	44	7844	556	556
2008	28	14,2	3,6	3,6	0,66	0,28	0,66	1,03	0,27	0,27	393	42	42	6586	466	466
2008	29	11,6	3,9	3,9	0,50	0,21	0,50	0,42	0,17	0,42	336	39	39	6383	452	452
2008	30	21,5	3,4	3,4	0,95	0,21	0,21	0,83	0,19	0,19	327	31	31	6137	434	434
2008	31	29,5	4,7	4,7	1,29	0,33	0,33	1,12	0,28	0,28	600	56	56	7952	563	563
2008	32	26,8	3,7	3,7	0,81	0,22	0,22	0,69	0,17	0,17	264	27	27	6424	455	455
2008	33	30,0	4,7	4,7	0,47	0,19	0,47	0,60	0,25	0,60	485	48	48	7108	503	503
2008	34	17,2	4,0	4,0	0,54	0,22	0,54	1,38	0,31	0,31	436	43	43	6294	446	446
2008	35	8,4	3,5	8,4	0,37	0,15	0,37	0,44	0,18	0,44	387	46	46	5569	395	395
2008	36	32,9	5,4	5,4	0,46	0,19	0,46	1,39	0,29	0,29	954	76	76	7513	532	532
2008	37	14,7	3,7	3,7	0,40	0,17	0,40	1,01	0,26	0,26	388	37	37	3771	267	267
2008	38	8,6	3,6	8,6	0,33	0,14	0,33	1,11	0,33	0,33	284	32	32	2370	168	168
2008	39	18,1	4,3	4,3	0,39	0,16	0,39	1,71	0,34	0,34	752	61	61	3451	245	245
2008	40	34,4	6,8	6,8	0,63	0,26	0,63	1,02	0,42	1,02	862	76	76	7606	539	539
2008	41	64,9	12,6	12,6	0,97	0,40	0,97	2,16	0,65	0,65	1352	119	119	5170	368	368
2008	42	63,6	9,7	9,7	0,87	0,36	0,87	3,48	0,58	0,58	2550	190	190	8098	574	574
2008	43	33,4	8,4	8,4	1,03	0,43	1,03	2,28	0,49	0,49	684	68	68	5443	386	386
2008	44	41,7	6,0	6,0	0,35	0,14	0,35	2,31	0,39	0,39	691	56	56	5967	422	422
2008	45	27,5	6,1	6,1	0,45	0,19	0,45	2,03	0,44	0,44	986	78	78	2679	190	190
2008	46	18,2	3,3	3,3	0,27	0,11	0,27	1,23	0,26	0,26	294	27	27	1641	117	117
2008	47	19,6	5,6	5,6	0,74	0,30	0,74	0,92	0,38	0,92	148	29	29	3408	242	242
2008	48	36,6	7,6	7,6	0,59	0,24	0,59	2,35	0,54	0,54	326	42	42	2825	201	201
2008	49	40,7	6,7	6,7	0,76	0,23	0,55	2,47	0,46	0,46	351	35	35	2826	166	166
2008	50	44,9	7,2	7,2	0,93	0,28	0,68	2,59	0,47	0,47	376	33	33	2827	146	146
2008	51	49,0	8,9	8,9	1,10	0,37	0,90	2,71	0,56	0,56	401	37	37	2827	148	148
2008	52	53,1	11,3	11,3	1,28	0,48	1,17	2,84	0,70	0,70	426	45	45	2828	170	170
2009	1	57,2	14,0	14,0	1,45	0,60	1,45	2,96	0,86	0,86	451	55	55	2828	207	207
2009	2	38,7	12,2	12,2	1,66	0,69	1,66	3,38	0,94	0,94	854	80	80	2587	188	188
2009	3	27,9	11,5	27,9	1,67	0,69	1,67	5,50	1,16	1,16	809	85	85	4131	298	298
2009	4	38,6	9,6	9,6	1,18	0,49	1,18	1,45	0,60	1,45	218	38	38	2065	150	150

2009	5	11,0	4,6	11,0	0,71	0,29	0,71	1,68	0,51	0,51	306	33	33	1683	121	121
2009	6	10,7	3,3	8,1	0,66	0,21	0,51	1,87	0,36	0,36	322	24	24	1640	89	89
2009	7	10,3	3,1	7,6	0,62	0,19	0,45	2,05	0,32	0,32	337	24	24	1596	84	84
2009	8	10,0	4,1	10,0	0,58	0,24	0,58	2,23	0,40	0,40	353	33	33	1553	111	111
2009	9	22,3	9,2	22,3	0,90	0,37	0,90	1,21	0,50	1,21	312	51	51	910	69	69
2009	10	31,6	6,2	6,2	0,56	0,23	0,56	0,83	0,34	0,83	163	31	31	1699	122	122
2009	11	6,4	2,7	6,4	0,34	0,14	0,34	0,82	0,24	0,24	228	23	23	1974	140	140
2009	12	10,7	4,4	10,7	0,69	0,28	0,69	0,91	0,38	0,91	214	36	36	2978	212	212
2009	13	24,7	4,9	4,9	0,77	0,32	0,77	0,64	0,26	0,64	185	22	22	3564	253	253
2009	14	6,0	2,5	6,0	0,36	0,15	0,36	0,92	0,25	0,25	467	42	42	5430	385	385
2009	15	34,8	5,6	5,6	0,76	0,31	0,76	0,61	0,25	0,61	287	35	35	5862	415	415
2009	16	17,9	5,1	5,1	0,60	0,25	0,60	3,52	0,53	0,53	357	46	46	6775	481	481
2009	17	13,4	3,2	5,2	0,49	0,15	0,36	2,43	0,31	0,31	275	33	33	4960	352	352
2009	18	9,0	3,7	9,0	0,38	0,16	0,38	1,34	0,33	0,33	210	33	33	4561	323	323
2009	19	8,1	3,4	8,1	0,37	0,15	0,37	0,47	0,19	0,47	224	26	26	5177	367	367
2009	20	5,4	2,2	5,4	0,41	0,17	0,41	0,52	0,21	0,52	153	15	15	1959	139	139
2009	21	4,6	1,9	4,6	0,64	0,15	0,15	0,45	0,14	0,14	170	17	17	4946	350	350
2009	22	5,5	2,3	5,5	0,93	0,21	0,21	0,33	0,14	0,33	210	20	20	4987	353	353
2009	23	10,4	2,4	2,4	1,12	0,20	0,20	0,65	0,15	0,15	237	33	33	1241	90	90
2009	24	12,9	5,3	12,9	1,04	0,43	1,04	0,78	0,32	0,78	315	49	49	8311	589	589
2009	25	13,8	5,7	13,8	0,94	0,39	0,94	0,57	0,24	0,57	219	22	22	6340	492	492
2009	26	15,2	6,3	15,2	0,93	0,38	0,93	0,63	0,26	0,63	258	24	24	4588	374	374
2009	27	31,5	7,1	7,1	1,05	0,43	1,05	0,60	0,25	0,60	433	35	35	8538	639	639
2009	28	13,3	5,5	13,3	0,96	0,40	0,96	0,56	0,23	0,56	178	18	18	4904	379	379
2009	29	27,5	6,5	6,5	0,98	0,40	0,98	0,60	0,25	0,60	344	29	29	6007	453	453
2009	30	13,4	5,6	13,4	1,00	0,42	1,00	0,64	0,26	0,64	274	24	24	6142	459	459
2009	31	18,1	5,5	5,5	0,87	0,36	0,87	0,78	0,22	0,22	301	24	24	8173	591	591
2009	32	14,0	5,8	14,0	1,04	0,43	1,04	0,59	0,24	0,59	333	29	29	6157	461	461
2009	33	15,9	4,8	11,3	1,01	0,35	0,85	0,71	0,20	0,47	444	27	27	5827	374	374
2009	34	17,8	4,4	8,8	0,98	0,30	0,72	0,83	0,19	0,37	555	33	33	5497	305	305
2009	35	19,7	4,7	6,9	0,95	0,28	0,68	0,95	0,21	0,30	666	44	44	5167	267	267
2009	36	21,6	5,5	6,1	0,92	0,31	0,74	1,08	0,26	0,28	777	56	56	4837	273	273
2009	37	23,5	6,7	6,7	0,89	0,37	0,89	1,20	0,32	0,32	889	70	70	4508	321	321
2009	38	14,5	6,0	14,5	0,78	0,32	0,78	0,58	0,24	0,58	737	58	58	5162	367	367
2009	39	12,3	5,1	12,3	0,72	0,30	0,72	0,97	0,22	0,22	653	48	48	4902	347	347
2009	40	14,1	5,9	14,1	0,80	0,33	0,80	0,91	0,29	0,29	348	31	31	4858	345	345
2009	41	16,2	6,7	16,2	0,93	0,38	0,93	1,01	0,29	0,29	465	39	39	4574	325	325
2009	42	14,8	6,1	14,8	0,78	0,32	0,78	0,61	0,25	0,61	111	17	17	1432	102	102
2009	43	16,8	4,9	11,9	0,91	0,27	0,65	0,71	0,21	0,51	236	19	19	2518	138	138
2009	44	18,7	7,8	18,7	1,04	0,43	1,04	0,81	0,34	0,81	360	35	35	3603	256	256
2009	45	21,4	6,3	15,3	1,20	0,35	0,86	0,95	0,28	0,68	340	25	25	2312	133	133
2009	46	24,1	10,0	24,1	1,36	0,56	1,36	1,09	0,45	1,09	320	36	36	1020	73	73
2009	47	31,2	12,9	31,2	1,82	0,76	1,82	2,30	0,60	0,60	516	51	51	3069	218	218
2009	48	21,3	8,8	21,3	1,20	0,50	1,20	1,57	0,46	0,46	221	31	31	2897	206	206
2009	49	24,3	10,1	24,3	1,29	0,53	1,29	1,04	0,43	1,04	506	48	48	3557	253	253

2009	50	23,7	9,8	23,7	1,37	0,57	1,37	1,89	0,45	0,45	483	44	44	2124	151	151
2009	51	28,1	11,6	28,1	1,47	0,61	1,47	2,06	0,56	0,56	1109	90	90	4674	332	332
2009	52	37,4	15,5	37,4	1,82	0,75	1,82	2,80	0,85	0,85	533	62	62	2214	158	158
2009	53	27,8	11,5	27,8	1,38	0,57	1,38	1,19	0,49	1,19	229	39	39	1529	109	109
2010	1	60,9	11,8	11,8	1,74	0,72	1,74	1,78	0,45	0,45	536	58	58	1310	94	94
2010	2	16,7	6,9	16,7	1,41	0,59	1,41	4,12	0,61	0,61	497	48	48	1641	117	117
2010	3	58,6	14,9	14,9	0,76	0,29	0,71	2,45	1,01	2,45	2419	192	192	9899	702	702
2010	4	21,6	8,4	8,4	0,11	0,05	0,11	3,48	0,59	0,59	1055	58	58	2165	18	18
2010	5	18,3	7,6	18,3	1,45	0,60	1,45	1,73	0,47	0,47	404	44	44	2100	150	150
2010	6	30,4	9,6	9,6	1,66	0,69	1,66	2,50	0,61	0,61	1157	96	96	4386	311	311
2010	7	52,6	11,3	11,3	2,19	0,91	2,19	1,97	0,58	0,58	645	58	58	1021	74	74
2010	8	22,5	9,3	22,5	1,77	0,73	1,77	1,21	0,28	0,28	263	42	42	2171	155	155
2010	9	12,2	5,0	12,2	0,95	0,39	0,95	1,29	0,39	0,39	153	29	29	2627	187	187
2010	10	21,4	8,9	21,4	1,56	0,65	1,56	3,87	0,79	0,79	474	54	54	2944	210	210
2010	11	13,9	5,8	13,9	1,24	0,51	1,24	0,91	0,22	0,22	156	31	31	3798	270	270
2010	12	10,4	4,3	10,4	0,94	0,39	0,94	0,86	0,15	0,15	159	28	28	2980	212	212
2010	13	21,5	5,1	5,1	0,82	0,34	0,82	0,52	0,16	0,16	240	28	28	3296	234	234
2010	14	8,7	3,6	8,7	1,00	0,41	1,00	1,14	0,25	0,25	278	26	26	2529	179	179
2010	15	15,3	4,4	4,4	0,74	0,31	0,74	0,91	0,27	0,27	321	32	32	4250	301	301
2010	16	33,4	7,2	7,2	0,87	0,36	0,87	1,33	0,36	0,36	206	32	32	5007	355	355
2010	17	37,9	5,1	5,1	0,78	0,32	0,78	0,86	0,20	0,20	301	28	28	5188	367	367
2010	18	34,4	5,5	5,5	0,88	0,36	0,88	0,87	0,14	0,14	206	22	22	2142	152	152
2010	19	30,6	4,7	4,7	0,77	0,32	0,77	0,45	0,11	0,11	173	19	19	1284	91	91
2010	20	23,4	5,0	5,0	0,76	0,31	0,76	1,24	0,27	0,27	173	21	21	3661	260	260
2010	21	31,5	3,9	3,9	0,70	0,29	0,70	1,00	0,17	0,17	216	20	20	4742	336	336
2010	22	22,8	4,5	4,5	0,79	0,33	0,79	0,56	0,18	0,18	149	21	21	4094	290	290
2010	23	49,1	6,6	6,6	0,94	0,39	0,94	0,93	0,27	0,27	562	49	49	7294	516	516
2010	24	35,2	5,0	5,0	0,80	0,33	0,80	0,51	0,12	0,12	178	23	23	5508	390	390
2010	25	17,8	4,0	4,0	0,81	0,33	0,81	0,76	0,19	0,19	194	22	22	4622	327	327
2010	26	35,4	4,4	4,4	0,73	0,30	0,73	0,96	0,19	0,19	247	23	23	6988	494	494
2010	27	37,0	6,1	6,1	0,84	0,35	0,84	0,86	0,25	0,25	231	29	29	5388	382	382
2010	28	32,6	4,1	4,1	0,05	0,02	0,05	0,60	0,21	0,21	536	33	33	5601	20	20
2010	29	31,1	6,1	6,1	0,94	0,39	0,94	0,98	0,24	0,24	386	38	38	7016	497	497
2010	30	7,8	3,2	7,8	0,69	0,29	0,69	0,32	0,13	0,32	284	27	27	4105	291	291
2010	31	28,9	5,5	5,5	0,83	0,34	0,83	0,20	0,08	0,20	473	32	32	3935	279	279
2010	32	23,3	5,1	5,1	0,82	0,34	0,82	0,67	0,22	0,22	455	39	39	7020	497	497
2010	33	10,4	4,3	10,4	0,73	0,30	0,73	0,71	0,12	0,12	347	25	25	4287	304	304
2010	34	28,8	5,3	5,3	0,73	0,30	0,73	0,99	0,26	0,26	267	29	29	4637	328	328
2010	35	11,7	4,5	4,5	0,04	0,02	0,04	0,55	0,21	0,21	174	25	25	3080	13	13
2010	36	36,7	5,8	5,8	0,79	0,33	0,79	0,75	0,23	0,23	387	35	35	3122	221	221
2010	37	28,6	4,7	4,7	0,71	0,29	0,71	1,55	0,25	0,25	199	24	24	4062	17	17
2010	38	53,2	7,2	7,2	0,95	0,39	0,95	1,18	0,31	0,31	390	36	36	5035	357	357
2010	39	14,3	5,9	14,3	0,77	0,32	0,77	0,89	0,13	0,13	164	19	19	1950	139	139
2010	40	40,0	5,9	5,9	0,96	0,40	0,96	1,47	0,31	0,31	713	58	58	5305	376	376
2010	41	46,8	10,7	10,7	1,59	0,66	1,59	2,96	0,60	0,60	489	55	55	3529	251	251

2010	42	38,2	5,4	5,4	1,00	0,41	1,00	1,69	0,26	0,26	397	33	33	2407	170	170
2010	43	51,6	6,9	6,9	1,11	0,46	1,11	1,68	0,33	0,33	304	30	30	3590	254	254
2010	44	50,8	6,0	6,0	0,97	0,40	0,97	1,52	0,26	0,26	535	43	43	4538	321	321
2010	45	34,0	7,3	7,3	1,26	0,52	1,26	1,90	0,42	0,42	235	33	33	3113	221	221
2010	46	18,8	7,8	18,8	1,48	0,61	1,48	1,95	0,31	0,31	530	52	52	1818	130	130
2010	47	15,1	6,3	15,1	0,88	0,36	0,88	1,40	0,19	0,19	397	6	6	1096	15	15
2010	48	12,1	5,0	12,1	0,54	0,22	0,54	5,31	0,54	0,54	1771	120	120	2284	163	163
2010	49	31,8	13,2	31,8	1,84	0,76	1,84	1,23	0,25	0,25	591	45	45	1295	30	30
2010	50	5,9	2,4	5,9	0,41	0,17	0,41	3,79	0,40	0,40	920	68	68	1299	92	92
2010	51	7,7	3,2	7,7	0,53	0,22	0,53	1,13	0,23	0,23	188	18	18	1619	115	115
2010	52	69,0	28,6	69,0	0,62	0,18	0,44	1,09	0,45	1,09	319	28	28	2559	182	182
2011	1	17,9	4,0	4,0	0,70	0,29	0,70	1,24	0,35	0,35	852	99	99	1233	88	88
2011	2	31,8	15,9	15,9	2,00	0,00	0,00	1,15	0,22	0,22	92	7	7	3444	32	32
2011	3	7,7	3,2	7,7	0,85	0,35	0,85	0,74	0,31	0,74	741	90	90	1882	134	134
2011	4	30,3	12,6	30,3	1,63	0,68	1,63	2,43	0,67	0,67	276	39	39	1593	114	114
2011	5	36,8	15,3	36,8	2,36	0,98	2,36	1,62	0,67	1,62	962	72	72	3518	251	251
2011	6	27,4	11,4	27,4	1,44	0,60	1,44	1,26	0,24	0,24	361	32	32	3431	244	244
2011	7	22,0	9,1	22,0	1,23	0,51	1,23	2,85	0,47	0,47	1278	95	95	5101	361	361
2011	8	34,1	14,1	34,1	1,88	0,78	1,88	8,11	1,00	1,00	2237	168	168	3774	268	268
2011	9	24,9	10,3	24,9	1,40	0,58	1,40	4,31	0,66	0,66	932	80	80	5956	422	422
2011	10	31,1	12,9	31,1	1,61	0,67	1,61	2,28	0,62	0,62	355	54	54	3832	272	272
2011	11	24,7	10,3	24,7	1,00	0,00	0,00	2,08	0,65	0,65	618	56	56	3986	29	29
2011	12	64,7	27,7	27,7	1,86	0,10	0,10	13,99	1,69	1,69	345	57	57	4329	222	222
2011	13	44,6	7,0	7,0	1,32	0,07	0,10	225,21	13,97	13,97	196	32	32	5286	314	314
2011	14	31,7	5,4	5,4	0,77	0,07	0,16	59,19	4,30	4,30	198	28	28	4172	298	298
2011	15	37,6	4,7	4,7	0,23	0,09	0,23	29,57	2,63	2,63	337	26	26	3568	263	263
2011	16	43,4	7,8	7,8	0,61	0,05	0,11	11,03	1,12	1,12	232	18	19	7385	686	686
2011	17	22,6	9,4	22,6	1,00	0,00	0,00	5,34	0,61	0,61	127	11	17	6257	443	443
2011	18	8,5	3,5	8,5	0,76	0,31	0,76	5,80	0,56	0,56	22	9	22	2151	153	153
2011	19	21,9	6,7	6,7	0,83	0,34	0,83	2,75	0,40	0,40	22	7	16	5192	368	368
2011	20	19,1	6,2	6,2	0,75	0,31	0,75	1,59	0,33	0,33	21	7	16	3679	261	261
2011	21	29,0	6,4	6,4	0,74	0,31	0,74	1,01	0,32	0,32	21	9	21	5332	377	377
2011	22	16,7	6,6	6,6	0,76	0,32	0,76	1,35	0,41	0,41	21	9	21	6311	447	447
2011	23	13,6	5,6	13,6	0,90	0,37	0,90	0,57	0,11	0,11	440	30	30	4334	307	307
2011	24	58,5	7,7	7,7	0,83	0,34	0,83	1,40	0,27	0,27	25	11	25	4255	301	301
2011	25	14,2	5,9	14,2	0,87	0,36	0,87	0,65	0,27	0,65	20	8	20	3639	258	258
2011	26	13,6	5,6	13,6	0,70	0,29	0,70	0,59	0,10	0,10	232	17	17	2981	211	211
2011	27	13,5	5,5	5,5	0,75	0,31	0,75	0,45	0,11	0,11	498	33	33	3965	281	281
2011	28	16,8	6,3	6,3	0,75	0,31	0,75	0,30	0,10	0,10	407	28	28	3942	279	279
2011	29	13,9	5,7	13,9	0,82	0,34	0,82	0,18	0,07	0,18	292	21	21	3586	254	254
2011	30	12,8	5,3	12,8	0,68	0,28	0,68	0,34	0,10	0,10	345	22	22	2205	156	156
2011	31	14,0	5,8	14,0	0,81	0,34	0,81	0,45	0,09	0,09	493	32	32	5284	374	374
2011	32	13,0	5,4	13,0	0,70	0,29	0,70	0,32	0,13	0,32	258	22	22	3595	255	255
2011	33	15,6	6,4	15,6	0,78	0,32	0,78	0,35	0,10	0,10	385	26	26	5426	384	384
2011	34	45,2	8,4	8,4	0,94	0,39	0,94	0,63	0,12	0,12	985	63	63	5321	377	377

2011	35	22,3	5,3	5,3	0,69	0,29	0,69	0,66	0,10	0,10	575	37	37	4781	338	338
2011	36	26,5	5,9	5,9	0,70	0,29	0,70	0,87	0,14	0,14	528	35	35	3581	254	254
2011	37	45,1	8,1	8,1	0,87	0,36	0,87	1,05	0,30	0,30	625	29	29	4246	301	301
2011	38	16,7	6,9	16,7	0,85	0,35	0,85	0,68	0,13	0,13	721	47	47	4577	324	324
2011	39	16,0	6,6	16,0	0,87	0,36	0,87	0,58	0,12	0,12	561	37	37	4514	320	320
2011	40	15,4	6,4	15,4	0,83	0,35	0,83	0,67	0,28	0,67	994	63	63	4501	319	319
2011	41	12,5	5,2	12,5	0,73	0,30	0,73	0,49	0,20	0,49	254	19	19	2137	151	151
2011	42	24,8	10,3	24,8	1,23	0,51	1,23	1,90	0,49	0,49	713	52	52	2836	202	202
2011	43	15,9	6,6	15,9	0,87	0,36	0,87	1,15	0,29	0,29	476	40	40	3091	219	219
2011	44	23,6	9,8	23,6	1,26	0,52	1,26	1,52	0,45	0,45	798	65	65	2953	210	210
2011	45	34,0	14,1	34,0	1,89	0,78	1,89	2,72	0,64	0,64	491	50	50	3377	239	239
2011	46	36,4	15,1	36,4	1,87	0,77	1,87	2,23	0,32	0,32	1026	70	70	2421	173	173
2011	47	29,6	12,2	29,6	1,57	0,65	1,57	1,24	0,27	0,27	1204	80	80	3205	228	228
2011	48	31,9	13,2	31,9	1,66	0,69	1,66	2,48	0,37	0,37	709	53	53	1149	82	82
2011	49	15,3	6,3	15,3	0,88	0,36	0,88	0,56	0,12	0,12	195	18	18	2510	178	178
2011	50	35,5	14,7	35,5	1,77	0,73	1,77	1,86	0,31	0,31	599	48	48	2247	161	161
2011	51	36,5	15,1	36,5	1,77	0,73	1,77	2,71	0,74	0,74	336	46	46	1327	96	96
2011	52	30,8	7,1	7,1	1,00	0,00	0,00	0,84	0,16	0,16	326	27	27	1568	111	111
2012	1	18,5	4,6	4,6	0,30	0,13	0,30	0,57	0,12	0,12	305	22	22	1313	93	93
2012	2	20,5	4,8	4,8	0,52	0,22	0,52	0,62	0,18	0,18	201	15	15	2105	149	149
2012	3	21,4	8,8	21,4	1,12	0,46	1,12	0,58	0,19	0,19	514	37	37	2430	173	173
2012	4	43,5	9,9	9,9	0,64	0,27	0,64	2,90	0,60	0,60	2585	183	183	4413	313	313
2012	5	86,5	15,2	15,2	1,00	0,42	1,00	7,54	1,13	1,13	2331	261	261	5196	582	582
2012	6	54,6	13,7	13,7	1,51	0,62	1,51	2,63	0,83	0,83	2750	195	195	3679	261	261
2012	7	38,8	16,1	38,8	1,63	0,67	1,63	1,30	0,27	0,27	972	71	71	4801	342	342
2012	8	25,2	10,4	25,2	0,59	0,25	0,59	1,12	0,28	0,28	323	24	24	3282	233	233
2012	9	26,6	8,4	8,4	0,71	0,29	0,71	1,49	0,46	0,46	244	18	18	1909	136	136
2012	10	18,7	7,8	18,7	0,32	0,13	0,32	1,28	0,25	0,25	32	5	5	574	42	42
2012	11	16,4	6,8	16,4	0,63	0,26	0,63	0,48	0,12	0,12	429	31	31	3303	234	234
2012	12	50,7	9,5	9,5	0,67	0,28	0,67	1,18	0,24	0,24	330	24	24	3050	217	217
2012	13	41,0	6,5	6,5	0,66	0,27	0,66	1,45	0,36	0,36	371	27	27	3934	279	279
2012	14	18,2	5,1	5,1	0,41	0,17	0,41	1,19	0,31	0,31	380	27	27	3297	234	234
2012	15	28,2	6,6	6,6	0,60	0,25	0,60	1,66	0,43	0,43	482	35	35	5299	375	375
2012	16	35,6	4,7	4,7	0,30	0,12	0,30	1,05	0,26	0,26	375	27	27	3029	214	214
2012	17	37,2	4,8	4,8	0,52	0,14	0,14	0,91	0,26	0,26	473	34	34	4611	326	326
2012	18	24,2	4,1	4,1	0,83	0,16	0,16	0,99	0,26	0,26	752	53	53	6355	449	449
2012	19	24,9	4,1	4,1	0,90	0,17	0,17	0,64	0,12	0,12	413	29	29	3671	260	260
2012	20	53,1	7,3	7,3	1,04	0,31	0,31	1,82	0,39	0,39	345	25	25	3894	276	276
2012	21	87,9	7,5	7,5	1,49	0,21	0,21	2,48	0,29	0,29	651	46	46	7808	552	552
2012	22	55,3	5,9	5,9	1,11	0,23	0,23	0,92	0,12	0,12	393	28	28	5405	382	382
2012	23	45,5	4,6	4,6	0,67	0,15	0,15	0,41	0,17	0,17	386	27	27	4203	297	297
2012	24	24,9	4,1	4,1	0,56	0,15	0,15	0,47	0,19	0,19	421	30	30	4010	284	284
2012	25	35,0	4,2	4,2	0,70	0,17	0,17	0,78	0,14	0,14	572	41	41	4962	351	351
2012	26	36,7	4,2	4,2	0,45	0,13	0,13	0,67	0,09	0,09	538	38	38	3899	276	276
2012	27	44,9	4,9	4,9	0,96	0,16	0,16	0,78	0,14	0,14	833	59	59	7572	536	536

2012	28	45,7	4,7	4,7	0,62	0,15	0,15	0,73	0,13	0,13	383	27	27	4736	335	335
2012	29	84,3	8,7	8,7	0,65	0,27	0,65	1,21	0,35	0,35	318	23	23	4603	326	326
2012	30	82,0	7,6	7,6	0,72	0,16	0,16	1,51	0,34	0,34	710	50	50	5849	414	414
2012	31	56,7	8,7	8,7	0,74	0,30	0,74	1,08	0,45	1,08	814	58	58	6457	457	457
2012	32	83,7	8,9	8,9	0,74	0,31	0,74	0,68	0,24	0,24	383	28	28	3822	271	271
2012	33	20,7	5,1	5,1	0,64	0,27	0,64	1,32	0,29	0,29	555	40	40	3479	246	246
2012	34	80,4	7,7	7,7	0,84	0,21	0,21	0,90	0,21	0,21	818	58	58	5921	419	419
2012	35	47,1	4,9	4,9	0,31	0,13	0,31	0,74	0,21	0,21	694	49	49	5500	389	389
2012	36	56,6	6,7	6,7	0,53	0,22	0,53	0,86	0,12	0,12	596	43	43	4012	284	284
2012	37	39,2	4,4	4,4	0,29	0,12	0,29	0,74	0,18	0,18	510	36	36	2890	205	205
2012	38	52,2	5,7	5,7	0,35	0,15	0,35	0,78	0,24	0,24	553	39	39	2697	191	191
2012	39	91,8	7,8	7,8	0,75	0,22	0,22	1,15	0,24	0,24	829	59	59	3736	264	264
2012	40	31,3	5,0	5,0	0,44	0,18	0,44	1,64	0,27	0,27	852	60	60	3501	248	248
2012	41	46,7	7,4	7,4	0,70	0,29	0,70	1,49	0,40	0,40	444	32	32	3091	219	219
2012	42	68,9	15,8	15,8	1,58	0,65	1,58	1,57	0,36	0,36	1610	115	115	4466	318	318
2012	43	29,2	4,6	4,6	0,38	0,16	0,38	1,28	0,27	0,27	818	58	58	2782	197	197
2012	44	23,3	5,9	5,9	1,08	0,30	0,30	0,92	0,16	0,16	525	38	38	3169	225	225
2012	45	21,2	4,5	4,5	0,38	0,16	0,38	1,00	0,26	0,26	324	23	23	2254	160	160
2012	46	42,9	6,7	6,7	0,38	0,16	0,38	2,27	0,37	0,37	654	47	47	1935	137	137
2012	47	30,5	7,7	7,7	0,68	0,28	0,68	1,51	0,46	0,46	1854	132	132	2241	159	159
2012	48	39,4	6,6	6,6	0,63	0,26	0,63	1,77	0,38	0,38	595	42	42	1718	122	122
2012	49	54,0	9,4	9,4	1,31	0,41	0,41	1,30	0,26	0,26	1554	110	110	2480	176	176
2012	50	58,5	12,0	12,0	1,01	0,42	1,01	2,20	0,25	0,25	925	67	67	1836	131	131
2012	51	39,6	6,9	6,9	0,65	0,27	0,65	2,16	0,42	0,42	2537	180	180	2211	157	157
2012	52	49,3	9,1	9,1	0,53	0,22	0,53	1,86	0,31	0,31	801	57	57	2603	184	184
2013	1	79,2	10,6	10,6	0,85	0,35	0,85	2,05	0,53	0,53	455	33	33	2967	211	211
2013	2	18,0	7,4	18,0	0,51	0,21	0,51	2,46	0,50	0,50	430	31	31	1948	138	138
2013	3	23,4	9,7	23,4	0,90	0,37	0,90	3,28	0,68	0,68	1315	94	94	1791	127	127
2013	4	21,2	8,8	21,2	0,90	0,37	0,90	3,54	0,61	0,61	1883	134	134	2023	144	144
2013	5	21,5	5,4	5,4	0,39	0,16	0,39	1,96	0,34	0,34	426	30	30	2227	158	158
2013	6	19,4	5,7	5,7	0,34	0,14	0,34	1,57	0,33	0,33	244	18	18	1474	104	104
2013	7	45,5	11,5	11,5	0,96	0,40	0,96	1,69	0,24	0,24	920	66	66	1541	110	110
2013	8	24,2	6,3	6,3	0,45	0,18	0,45	1,68	0,39	0,39	939	67	67	2018	143	143
2013	9	26,3	5,5	5,5	0,36	0,15	0,36	1,19	0,31	0,31	1238	88	88	2359	167	167
2013	10	46,2	7,8	7,8	0,58	0,24	0,58	2,23	0,46	0,46	564	40	40	4349	308	308
2013	11	23,1	3,8	3,8	0,39	0,16	0,39	1,36	0,24	0,24	756	54	54	3096	219	219
2013	12	22,1	5,0	5,0	0,56	0,23	0,56	0,84	0,13	0,13	594	42	42	3660	259	259
2013	13	43,8	4,9	4,9	0,30	0,13	0,30	2,25	0,30	0,30	606	43	43	4067	288	288
2013	14	16,2	6,7	16,2	0,75	0,31	0,75	1,50	0,22	0,22	584	42	42	1767	126	126
2013	15	33,1	7,5	7,5	0,96	0,40	0,96	0,91	0,20	0,20	511	37	37	4468	317	317
2013	16	49,1	7,2	7,2	0,77	0,32	0,77	2,07	0,42	0,42	449	32	32	5003	355	355
2013	17	58,9	7,4	7,4	0,75	0,31	0,75	2,81	0,47	0,47	759	54	54	5867	416	416
2013	18	20,5	5,6	5,6	1,01	0,32	0,32	1,16	0,35	0,35	438	32	32	2752	196	196
2013	19	23,7	5,0	5,0	0,49	0,20	0,49	0,59	0,10	0,10	624	44	44	5225	370	370
2013	20	30,5	4,4	4,4	0,41	0,17	0,41	0,81	0,23	0,23	501	36	36	4679	331	331

2013	21	18,2	3,4	3,4	0,69	0,16	0,16	0,79	0,21	0,21	257	18	18	3988	282	282
2013	22	17,4	4,5	4,5	0,46	0,19	0,46	0,33	0,07	0,07	343	25	25	2366	168	168
2013	23	17,1	4,7	4,7	0,51	0,21	0,51	0,73	0,13	0,13	422	30	30	2995	212	212
2013	24	21,6	3,5	3,5	0,62	0,14	0,14	0,35	0,07	0,07	465	33	33	4834	342	342
2013	25	23,1	4,8	4,8	0,95	0,26	0,26	0,59	0,12	0,12	670	48	48	4340	307	307
2013	26	13,2	3,1	3,1	0,27	0,11	0,27	0,43	0,18	0,43	192	14	14	2253	160	160
2013	27	24,0	4,1	4,1	0,36	0,15	0,36	0,92	0,24	0,24	537	38	38	5547	393	393
2013	28	15,4	3,3	3,3	0,48	0,11	0,11	1,25	0,22	0,22	380	27	27	4163	295	295
2013	29	19,3	3,7	3,7	0,69	0,18	0,18	0,44	0,08	0,08	370	26	26	4058	287	287
2013	30	20,5	4,3	4,3	0,76	0,21	0,21	1,20	0,31	0,31	873	62	62	5678	402	402
2013	31	22,3	4,2	4,2	0,56	0,17	0,17	1,34	0,27	0,27	504	36	36	4487	318	318
2013	32	21,1	3,9	3,9	0,25	0,10	0,25	0,73	0,12	0,12	801	57	57	5692	403	403
2013	33	23,5	3,7	3,7	0,55	0,13	0,13	0,44	0,13	0,13	547	39	39	4899	347	347
2013	34	19,4	3,8	3,8	0,47	0,13	0,13	0,66	0,10	0,10	500	36	36	4635	328	328
2013	35	19,6	4,2	4,2	0,41	0,17	0,41	1,12	0,26	0,26	594	42	42	4171	295	295
2013	36	22,9	4,0	4,0	0,41	0,13	0,13	0,47	0,11	0,11	432	31	31	3701	262	262
2013	37	8,5	3,5	8,5	0,59	0,15	0,15	0,53	0,22	0,53	283	20	20	1931	137	137
2013	38	9,1	3,8	9,1	0,31	0,13	0,31	0,36	0,10	0,10	280	20	20	2824	200	200
2013	39	26,9	4,6	4,6	0,57	0,18	0,18	1,35	0,26	0,26	801	57	57	4623	327	327
2013	40	17,8	4,3	4,3	0,42	0,17	0,42	1,16	0,16	0,16	353	25	25	1998	142	142
2013	41	33,0	4,9	4,9	0,39	0,16	0,39	1,37	0,30	0,30	1408	100	100	3712	263	263
2013	42	29,2	5,7	5,7	0,67	0,28	0,67	0,81	0,13	0,13	918	65	65	3417	242	242
2013	43	25,0	4,6	4,6	0,41	0,17	0,41	1,14	0,29	0,29	1046	74	74	3973	281	281
2013	44	15,8	4,4	4,4	0,28	0,12	0,28	0,70	0,14	0,14	407	29	29	3130	222	222
2013	45	28,5	4,7	4,7	0,56	0,17	0,17	0,64	0,09	0,09	584	42	42	3036	215	215
2013	46	35,3	6,6	6,6	0,57	0,24	0,57	1,58	0,24	0,24	590	42	42	2137	151	151
2013	47	27,5	5,0	5,0	0,25	0,11	0,25	1,05	0,30	0,30	1126	80	80	1844	131	131
2013	48	18,4	3,2	3,2	0,22	0,09	0,22	0,59	0,12	0,12	244	17	17	1662	118	118
2013	49	23,7	6,2	6,2	0,41	0,17	0,41	1,57	0,39	0,39	345	25	25	2088	148	148
2013	50	23,2	4,7	4,7	0,42	0,17	0,42	1,05	0,27	0,27	440	31	31	2451	174	174
2013	51	37,4	7,7	7,7	0,73	0,30	0,73	1,66	0,44	0,44	974	69	69	3648	258	258
2013	52	21,9	6,2	6,2	0,59	0,24	0,59	1,26	0,38	0,38	949	68	68	3874	274	274
2014	1	56,9	7,9	7,9	0,38	0,16	0,38	2,16	0,44	0,44	854	61	61	1761	125	125
2014	2	28,1	6,7	6,7	0,46	0,19	0,46	1,38	0,38	0,38	568	41	41	1966	139	139
2014	3	29,0	5,8	5,8	0,55	0,23	0,55	1,51	0,33	0,33	820	58	58	2001	142	142
2014	4	17,6	3,6	3,6	0,28	0,11	0,28	3,01	0,30	0,30	1143	81	81	2313	164	164
2014	5	21,5	6,0	6,0	0,51	0,21	0,51	1,18	0,13	0,13	1160	82	82	3232	229	229
2014	6	46,3	8,2	8,2	0,41	0,17	0,41	2,29	0,50	0,50	1017	73	73	5862	415	415
2014	7	35,6	7,0	7,0	1,21	0,38	0,38	1,02	0,12	0,12	336	25	25	2205	157	157
2014	8	42,4	8,1	8,1	0,51	0,21	0,51	1,90	0,44	0,44	465	33	33	2564	182	182
2014	9	32,5	5,2	5,2	0,40	0,17	0,40	1,67	0,31	0,31	854	61	61	2444	173	173
2014	10	17,5	4,7	4,7	0,53	0,22	0,53	1,69	0,32	0,32	1016	72	72	2045	145	145
2014	11	24,8	3,9	3,9	0,59	0,18	0,44	1,72	0,26	0,26	949	56	56	3088	155	155
2014	12	32,0	4,3	4,3	0,66	0,20	0,47	1,76	0,25	0,25	883	45	45	4132	232	232
2014	13	39,2	5,5	5,5	0,72	0,25	0,60	1,79	0,30	0,30	817	44	44	5175	332	332

2014	14	46,5	7,1	7,1	0,79	0,33	0,79	1,83	0,39	0,39	750	54	54	6219	440	440
2014	15	26,7	5,6	5,6	0,56	0,23	0,56	1,23	0,19	0,19	408	29	29	2625	186	186
2014	16	13,0	3,8	3,8	0,39	0,16	0,39	1,00	0,18	0,18	377	27	27	2770	196	196
2014	17	28,1	4,9	4,9	0,42	0,18	0,42	1,09	0,28	0,28	573	41	41	3692	261	261
2014	18	19,4	4,1	4,1	0,32	0,13	0,32	1,12	0,26	0,26	517	37	37	4483	317	317
2014	19	16,4	3,8	3,8	0,84	0,18	0,18	0,63	0,14	0,14	421	30	30	5813	411	411
2014	20	13,7	3,8	3,8	0,31	0,13	0,31	0,70	0,16	0,16	220	16	16	1652	117	117
2014	21	17,4	3,6	3,6	0,76	0,15	0,15	0,49	0,20	0,49	591	42	42	4468	316	316
2014	22	8,2	3,4	8,2	0,62	0,17	0,17	0,51	0,21	0,51	432	31	31	3950	279	279
2014	23	12,1	5,0	12,1	0,79	0,25	0,25	0,76	0,32	0,76	607	44	44	4018	284	284
2014	24	13,9	3,9	3,9	0,44	0,18	0,44	0,54	0,22	0,54	458	33	33	4602	326	326
2014	25	9,9	4,1	9,9	0,42	0,18	0,42	0,71	0,29	0,71	323	23	23	4778	338	338
2014	26	10,1	4,2	10,1	1,34	0,32	0,32	0,72	0,30	0,72	213	16	16	3074	218	218
2014	27	17,1	4,4	4,4	0,38	0,16	0,38	0,32	0,10	0,10	500	36	36	4285	303	303
2014	28	13,6	4,0	4,0	0,78	0,22	0,22	0,32	0,10	0,10	614	44	44	5039	357	357
2014	29	18,5	4,0	4,0	0,39	0,16	0,39	0,93	0,26	0,26	592	42	42	5380	381	381
2014	30	18,7	5,2	5,2	0,51	0,21	0,51	0,43	0,10	0,10	612	44	44	4555	322	322
2014	31	10,9	4,5	10,9	0,57	0,24	0,57	0,43	0,10	0,10	842	60	60	4957	351	351
2014	32	20,3	5,2	5,2	0,65	0,27	0,65	0,64	0,27	0,64	570	41	41	4852	343	343
2014	33	8,3	3,4	8,3	0,36	0,15	0,36	0,56	0,23	0,56	444	32	32	3946	279	279
2014	34	17,9	3,5	3,5	0,26	0,11	0,26	0,48	0,11	0,11	469	33	33	4835	342	342
2014	35	17,7	4,1	4,1	0,38	0,16	0,38	0,48	0,11	0,11	516	37	37	4476	317	317
2014	36	26,1	4,5	4,5	0,36	0,15	0,36	1,13	0,27	0,27	1093	78	78	3909	277	277
2014	37	22,3	4,1	4,1	0,40	0,17	0,40	0,58	0,24	0,58	1320	94	94	4792	339	339
2014	38	36,4	5,0	5,0	0,29	0,12	0,29	1,09	0,28	0,28	1188	84	84	4180	296	296
2014	39	10,7	4,4	10,7	0,38	0,16	0,38	0,67	0,28	0,67	307	22	22	3288	233	233
2014	40	29,7	5,4	5,4	0,44	0,18	0,44	0,73	0,30	0,73	870	62	62	3730	264	264
2014	41	30,3	4,2	4,2	0,30	0,13	0,30	0,67	0,09	0,09	1330	94	94	3792	268	268
2014	42	28,5	4,5	4,5	0,43	0,18	0,43	0,68	0,11	0,11	794	56	56	3049	216	216
2014	43	23,6	3,7	3,7	0,30	0,13	0,30	1,25	0,23	0,23	579	41	41	2586	183	183
2014	44	47,2	14,3	14,3	1,44	0,60	1,44	1,41	0,17	0,17	1055	77	77	3244	232	232
2014	45	45,6	6,0	6,0	0,67	0,21	0,21	1,06	0,33	0,33	1065	76	76	4572	324	324
2014	46	36,6	5,1	5,1	0,33	0,14	0,33	1,20	0,30	0,30	1565	111	111	2047	145	145
2014	47	25,6	4,2	4,2	0,25	0,10	0,25	0,94	0,10	0,10	1098	78	78	1138	81	81
2014	48	41,3	6,2	6,2	0,95	0,26	0,26	1,20	0,38	0,38	1136	81	81	3481	246	246
2014	49	39,4	5,7	5,7	0,40	0,17	0,40	0,73	0,30	0,73	1504	107	107	2408	171	171
2014	50	35,7	6,6	6,6	0,47	0,20	0,47	0,90	0,37	0,90	498	36	36	2531	179	179
2014	51	25,4	5,0	5,0	0,36	0,15	0,36	0,68	0,28	0,68	445	32	32	1936	137	137
2014	52	20,9	5,7	5,7	0,58	0,24	0,58	0,79	0,33	0,79	307	22	22	1138	102	102
2015	1	45,2	6,8	6,8	0,91	0,28	0,28	0,73	0,12	0,12	399	29	29	2441	173	173
2015	2	23,6	4,1	4,1	0,72	0,20	0,20	0,59	0,09	0,09	382	27	27	3325	235	235
2015	3	30,2	7,3	7,3	0,93	0,38	0,93	1,07	0,16	0,16	399	29	29	2774	197	197
2015	4	31,0	4,6	4,6	0,43	0,18	0,43	1,31	0,26	0,26	714	51	51	1122	80	80
2015	5	31,4	7,7	7,7	0,85	0,35	0,85	0,94	0,14	0,14	285	21	21	1939	139	139
2015	6	22,8	4,0	4,0	0,37	0,15	0,37	1,19	0,24	0,24	427	30	30	1785	126	126

2015	7	33,9	5,7	5,7	0,45	0,19	0,45	1,54	0,35	0,35	357	26	26	1640	116	116
2015	8	48,5	6,2	6,2	0,61	0,19	0,19	1,50	0,34	0,34	1038	74	74	4791	339	339
2015	9	23,7	4,8	4,8	0,35	0,14	0,35	1,11	0,27	0,27	538	38	38	1545	110	110
2015	10	37,9	4,9	4,9	0,37	0,15	0,37	1,21	0,26	0,26	229	16	16	2891	205	205
2015	11	25,2	6,0	6,0	0,65	0,27	0,65	1,36	0,36	0,36	487	35	35	2318	165	165
2015	12	8,7	3,6	8,7	0,20	0,08	0,20	1,27	0,12	0,12	251	18	18	1563	111	111
2015	13	96,5	8,6	8,6	0,44	0,18	0,44	3,49	0,42	0,42	943	67	67	5318	376	376
2015	14	6,7	2,8	6,7	0,23	0,09	0,23	0,35	0,07	0,07	132	10	10	1175	83	83
2015	15	88,8	8,3	8,3	1,24	0,29	0,29	2,08	0,36	0,36	735	52	52	8151	577	577
2015	16	35,3	4,7	4,7	0,40	0,17	0,40	1,89	0,27	0,27	373	27	27	3278	232	232
2015	17	8,5	3,5	8,5	0,65	0,14	0,14	1,50	0,25	0,25	470	33	33	4250	301	301
2015	18	23,4	3,7	3,7	0,51	0,13	0,13	0,46	0,19	0,46	455	32	32	4840	342	342
2015	19	39,7	6,1	6,1	1,19	0,37	0,37	0,40	0,06	0,06	432	31	31	3876	275	275
2015	20	42,8	6,1	6,1	1,21	0,26	0,26	2,25	0,37	0,37	473	34	34	8423	596	596
2015	21	16,1	3,1	3,1	0,28	0,11	0,28	0,47	0,07	0,07	343	24	24	4010	284	284
2015	22	24,0	3,8	3,8	0,46	0,14	0,14	0,65	0,20	0,20	398	28	28	4424	313	313
2015	23	32,1	4,7	4,7	0,47	0,19	0,47	2,57	0,32	0,32	560	40	40	6378	451	451
2015	24	33,9	5,5	5,5	0,53	0,22	0,53	2,79	0,38	0,38	608	43	43	5482	388	388
2015	25	22,2	4,8	4,8	0,48	0,20	0,48	0,34	0,07	0,07	285	21	21	3812	270	270
2015	26	22,7	5,0	5,0	0,61	0,25	0,61	0,33	0,09	0,09	422	30	30	2598	184	184
2015	27	23,6	3,8	3,8	0,81	0,16	0,16	1,41	0,23	0,23	450	32	32	3184	225	225
2015	28	41,9	4,7	4,7	0,62	0,18	0,18	12,72	0,95	0,95	419	30	30	5564	394	394
2015	29	27,8	5,3	5,3	0,45	0,19	0,45	1,17	0,29	0,29	483	35	35	3580	254	254
2015	30	27,9	5,7	5,7	0,71	0,29	0,71	1,25	0,34	0,34	485	35	35	3564	253	253
2015	31	22,5	4,7	4,7	0,43	0,18	0,43	7,32	0,61	0,61	374	27	27	4635	329	329
2015	32	31,2	4,9	4,9	0,70	0,21	0,21	0,89	0,25	0,25	1284	91	91	6979	494	494
2015	33	36,8	5,4	5,4	0,76	0,23	0,23	5,99	0,56	0,56	1458	103	103	7683	544	544
2015	34	36,4	4,9	4,9	0,40	0,16	0,40	6,44	0,55	0,55	646	46	46	4558	323	323
2015	35	18,6	4,6	4,6	0,37	0,15	0,37	0,56	0,08	0,08	911	65	65	4354	310	310
2015	36	19,2	3,6	3,6	0,42	0,12	0,12	0,82	0,20	0,20	814	58	58	4743	336	336
2015	37	23,7	5,3	5,3	0,37	0,15	0,37	2,63	0,37	0,37	598	43	43	2626	187	187
2015	38	15,2	4,8	4,8	0,43	0,18	0,43	1,03	0,29	0,29	830	59	59	4953	352	352
2015	39	18,6	5,0	5,0	0,47	0,19	0,47	0,46	0,08	0,08	701	50	50	3175	226	226
2015	40	19,8	5,0	5,0	0,43	0,18	0,43	0,93	0,10	0,10	624	45	45	2268	162	162
2015	41	43,1	6,3	6,3	0,49	0,20	0,49	4,17	0,48	0,48	1112	79	79	3722	264	264
2015	42	26,1	5,5	5,5	0,39	0,16	0,39	0,67	0,09	0,09	1109	79	79	2091	149	149
2015	43	23,1	4,7	4,7	0,47	0,20	0,47	1,42	0,29	0,29	741	53	53	2476	176	176
2015	44	39,0	6,7	6,7	0,55	0,23	0,55	1,45	0,39	0,39	1054	75	75	3619	257	257
2015	45	76,7	13,3	13,3	0,98	0,41	0,98	3,06	0,75	0,75	1806	129	129	4987	357	357
2015	46	17,0	4,9	4,9	0,45	0,19	0,45	1,15	0,34	0,34	519	37	37	2890	206	206
2015	47	23,3	5,8	5,8	0,54	0,22	0,54	1,12	0,35	0,35	362	26	26	2478	177	177
2015	48	33,0	6,5	6,5	0,65	0,27	0,65	1,25	0,36	0,36	569	41	41	1885	135	135
2015	49	27,3	7,0	7,0	0,60	0,25	0,60	0,96	0,13	0,13	488	35	35	3380	240	240
2015	50	34,1	5,8	5,8	0,62	0,26	0,62	1,11	0,31	0,31	614	44	44	2398	170	170
2015	51	26,0	6,1	6,1	0,45	0,19	0,45	1,51	0,17	0,17	782	56	56	2169	154	154

2015	52	10,8	4,5	10,8	0,40	0,12	0,29	0,64	0,27	0,64	938	67	67	3520	248	248
2016	1	68,2	8,2	8,2	0,35	0,15	0,35	2,16	0,39	0,39	557	40	40	2103	150	150
2016	2	49,3	8,9	8,9	0,50	0,21	0,50	3,92	0,68	0,68	2207	156	156	2653	189	189
2016	3	13,2	5,5	13,2	0,69	0,28	0,69	0,75	0,13	0,13	415	30	30	2445	174	174
2016	4	37,6	9,3	9,3	1,11	0,46	1,11	1,44	0,23	0,23	648	47	47	2456	176	176
2016	5	13,1	5,4	13,1	0,35	0,14	0,35	0,57	0,14	0,14	463	33	33	3285	233	233
2016	6	12,7	5,3	12,7	0,55	0,23	0,55	0,82	0,34	0,82	256	19	19	2219	158	158
2016	7	20,5	4,4	4,4	0,40	0,17	0,40	0,57	0,12	0,12	290	21	21	1982	141	141
2016	8	14,0	5,8	14,0	0,38	0,16	0,38	0,52	0,13	0,13	506	37	37	1711	122	122
2016	9	26,9	5,5	5,5	0,78	0,25	0,25	0,85	0,13	0,13	286	21	21	2568	182	182
2016	10	21,7	4,1	4,1	0,28	0,12	0,28	0,98	0,24	0,24	608	43	43	1532	109	109
2016	11	17,0	4,2	4,2	0,36	0,15	0,36	1,30	0,28	0,28	500	36	36	1683	119	119
2016	12	30,7	4,8	4,8	0,30	0,13	0,30	1,31	0,29	0,29	433	31	31	3835	271	271
2016	13	24,4	4,1	4,1	0,24	0,10	0,24	1,20	0,24	0,24	302	22	22	3267	231	231
2016	14	23,5	5,2	5,2	0,39	0,16	0,39	0,52	0,11	0,11	326	23	23	3932	278	278
2016	15	40,1	5,1	5,1	0,59	0,17	0,17	0,86	0,14	0,14	577	41	41	4835	342	342
2016	16	24,4	5,5	5,5	0,51	0,21	0,51	0,58	0,12	0,12	601	43	43	3869	274	274
2016	17	11,4	4,7	11,4	0,54	0,22	0,54	1,28	0,34	0,34	244	18	18	4338	307	307
2016	18	18,4	3,9	3,9	0,46	0,13	0,13	0,76	0,22	0,22	257	18	18	2679	190	190
2016	19	19,5	4,2	4,2	0,90	0,21	0,21	0,49	0,10	0,10	507	36	36	4964	351	351
2016	20	17,0	4,3	4,3	0,41	0,17	0,41	0,40	0,11	0,11	485	35	35	5089	360	360
2016	21	16,3	3,9	3,9	1,00	0,19	0,19	0,54	0,22	0,54	419	30	30	5520	390	390
2016	22	21,8	4,5	4,5	0,69	0,17	0,17	0,72	0,07	0,07	627	45	45	5924	419	419
2016	23	24,1	4,1	4,1	0,81	0,18	0,18	0,45	0,09	0,09	578	41	41	6930	490	490
2016	24	30,1	4,3	4,3	1,20	0,17	0,17	1,41	0,25	0,25	437	31	31	7752	548	548
2016	25	26,5	4,5	4,5	0,70	0,19	0,19	0,76	0,24	0,24	398	29	29	3979	282	282
2016	26	21,3	4,0	4,0	0,69	0,15	0,15	0,83	0,24	0,24	594	42	42	4785	339	339
2016	27	16,5	4,8	4,8	0,41	0,17	0,41	0,59	0,24	0,59	422	30	30	5058	358	358
2016	28	19,0	4,0	4,0	0,62	0,16	0,16	0,28	0,10	0,10	283	20	20	4201	297	297
2016	29	19,9	5,1	5,1	0,43	0,18	0,43	0,70	0,29	0,70	388	28	28	2657	188	188
2016	30	17,4	4,3	4,3	0,55	0,17	0,17	0,89	0,27	0,27	357	26	26	3908	277	277
2016	31	16,5	3,7	3,7	0,66	0,15	0,15	0,50	0,21	0,50	651	46	46	4656	329	329
2016	32	17,7	4,4	4,4	0,57	0,15	0,15	0,57	0,24	0,57	369	27	27	3769	267	267
2016	33	17,7	3,7	3,7	0,43	0,13	0,13	0,73	0,22	0,22	316	23	23	3672	260	260
2016	34	27,7	4,8	4,8	0,67	0,17	0,17	0,58	0,24	0,58	588	42	42	5446	385	385
2016	35	18,6	4,2	4,2	0,35	0,15	0,35	0,41	0,06	0,06	555	40	40	5243	371	371
2016	36	28,8	4,7	4,7	0,31	0,13	0,31	0,42	0,06	0,06	657	47	47	6072	430	430
2016	37	24,5	4,3	4,3	0,52	0,14	0,14	1,32	0,26	0,26	1017	72	72	5084	360	360
2016	38	60,1	6,5	6,5	0,45	0,19	0,45	4,05	0,45	0,45	1339	95	95	6853	485	485
2016	39	22,8	4,2	4,2	0,26	0,11	0,26	1,29	0,17	0,17	754	53	53	3955	280	280
2016	40	23,4	4,1	4,1	0,28	0,12	0,28	0,49	0,11	0,11	1452	103	103	5516	390	390
2016	41	9,3	3,9	9,3	0,21	0,09	0,21	0,62	0,16	0,16	309	22	22	1024	73	73
2016	42	9,2	3,8	9,2	0,19	0,08	0,19	0,65	0,12	0,12	583	41	41	1777	126	126
2016	43	24,8	5,1	5,1	0,34	0,14	0,34	0,57	0,12	0,12	757	54	54	1134	80	80
2016	44	25,6	4,5	4,5	0,24	0,10	0,24	0,54	0,15	0,15	682	48	48	2540	180	180

2016	45	12,7	3,8	3,8	0,20	0,08	0,20	0,53	0,13	0,13	428	30	30	2611	185	185
2016	46	37,9	5,3	5,3	0,30	0,12	0,30	1,43	0,22	0,22	635	45	45	2274	161	161
2016	47	21,4	6,4	6,4	0,32	0,13	0,32	1,25	0,23	0,23	656	47	47	2522	179	179
2016	48	37,0	7,1	7,1	0,76	0,32	0,76	0,63	0,17	0,17	1002	71	71	3398	241	241
2016	49	15,8	4,4	4,4	0,26	0,11	0,26	0,87	0,16	0,16	307	22	22	2252	160	160
2016	50	28,9	7,6	7,6	0,41	0,17	0,41	1,94	0,26	0,26	666	48	48	2609	185	185
2016	51	11,4	4,7	11,4	0,51	0,21	0,51	1,48	0,28	0,28	573	41	41	2301	163	163
2016	52	27,0	7,0	7,0	0,46	0,19	0,46	1,72	0,36	0,36	795	57	57	1918	136	136
2016	53	33,6	7,4	7,4	0,48	0,20	0,48	1,07	0,24	0,24	322	24	24	2591	184	184

Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych miesięcznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego. Depozycja aktywności [Bq/m²].

Rok	Nr	Pb-210			Be-7			Cs-137			Na-22			K-40		
		D	dD +	dD -	D	dD +	dD -	D	dD +	dD -	D	dD +	dD -	D	dD +	dD -
2005	8	11,02	0,70	0,70	141,3	7,3	7,3	0,0418	0,0046	0,0046	0,0186	0,0041	0,0041	0,92	0,11	0,11
2005	9	5,26	0,47	0,47	37,3	2,2	2,2	0,0342	0,0043	0,0043	0,0060	0,0025	0,0060	0,85	0,12	0,12
2005	10	1,03	0,33	0,33	6,4	1,0	1,0	0,0181	0,0050	0,0050	0,0055	0,0023	0,0055	0,19	0,08	0,19
2005	11	3,88	0,45	0,45	15,3	1,1	1,1	0,0100	0,0041	0,0100	0,0066	0,0027	0,0066	0,51	0,12	0,12
2005	12	11,88	0,82	0,82	55,4	2,9	2,9	0,1824	0,0117	0,0117	0,0059	0,0024	0,0059	0,47	0,11	0,11
2006	1	8,88	0,76	0,76	19,0	1,3	1,3	0,0289	0,0049	0,0049	0,0065	0,0027	0,0065	0,29	0,11	0,11
2006	2	4,47	0,54	0,54	25,6	1,5	1,5	0,0147	0,0045	0,0045	0,0094	0,0039	0,0094	0,22	0,09	0,22
2006	3	4,43	0,52	0,52	22,3	1,4	1,4	0,0156	0,0038	0,0038	0,0052	0,0021	0,0052	0,20	0,08	0,20
2006	4	6,76	0,75	0,75	107,5	5,6	5,6	0,0176	0,0054	0,0054	0,0162	0,0067	0,0162	0,25	0,11	0,25
2006	5	3,11	0,57	0,57	60,8	3,4	3,4	0,0807	0,0073	0,0073	0,0063	0,0026	0,0063	0,21	0,09	0,21
2006	6	11,61	0,83	0,83	276,0	14,6	14,6	0,0511	0,0052	0,0052	0,0317	0,0056	0,0056	0,91	0,12	0,12
2006	7	5,26	0,53	0,53	86,3	5,2	5,2	0,0471	0,0063	0,0063	0,0128	0,0053	0,0128	0,89	0,14	0,14
2006	8	2,24	0,35	0,35	40,2	3,0	3,0	0,0186	0,0048	0,0048	0,0048	0,0020	0,0048	0,21	0,09	0,21
2006	9	2,79	0,36	0,36	29,3	2,1	2,1	0,0301	0,0047	0,0047	0,0058	0,0017	0,0041	0,57	0,10	0,14
2006	10	3,35	0,63	0,63	18,4	2,9	2,9	0,0416	0,0081	0,0081	0,0067	0,0028	0,0067	0,93	0,19	0,19
2006	11	6,03	0,47	0,47	71,5	4,2	4,2	0,0187	0,0038	0,0038	0,0050	0,0021	0,0050	0,50	0,11	0,11
2006	12	7,92	1,31	1,31	28,9	4,6	4,6	0,0188	0,0054	0,0054	0,0079	0,0033	0,0079	0,71	0,17	0,17
2007	1	6,71	0,86	0,86	135,9	9,8	9,8	0,0529	0,0123	0,0123	0,0233	0,0097	0,0233	1,30	0,22	0,22
2007	2	3,44	0,45	0,45	71,8	6,7	6,7	0,0233	0,0059	0,0059	0,0119	0,0049	0,0119	0,57	0,11	0,11
2007	3	3,20	0,36	0,36	109,3	7,7	7,7	0,0270	0,0054	0,0054	0,0148	0,0047	0,0047	0,31	0,08	0,08
2007	4	4,25	0,96	0,96	46,8	9,2	9,2	0,0395	0,0094	0,0094	0,0119	0,0049	0,0119	1,01	0,24	0,24
2007	5	1,22	0,34	0,34	34,8	3,8	3,8	0,0372	0,0066	0,0066	0,0092	0,0038	0,0092	0,61	0,15	0,15
2007	6	11,53	0,85	0,85	210,8	13,1	13,1	0,0707	0,0071	0,0071	0,0401	0,0073	0,0073	2,25	0,20	0,20
2007	7	15,69	1,18	1,18	222,2	14,6	14,6	0,0475	0,0061	0,0061	0,0123	0,0051	0,0123	1,74	0,18	0,18
2007	8	27,72	1,64	1,64	239,9	13,4	13,4	0,0352	0,0049	0,0049	0,0199	0,0059	0,0059	1,13	0,13	0,13
2007	9	23,43	1,49	1,49	201,0	10,9	10,9	0,0352	0,0060	0,0060	0,0136	0,0056	0,0136	1,03	0,15	0,15
2007	10	15,33	1,26	1,26	120,1	9,3	9,3	0,0312	0,0056	0,0056	0,0093	0,0039	0,0093	0,81	0,13	0,13
2007	11	23,07	1,53	1,53	98,0	6,2	6,2	0,0364	0,0047	0,0047	0,0112	0,0046	0,0112	1,00	0,14	0,14
2007	12	3,98	0,88	0,88	18,9	4,0	4,0	0,0212	0,0062	0,0062	0,0076	0,0032	0,0076	0,20	0,08	0,20

2015	7	14,03	0,86	0,86	93,6	5,5	5,5	0,1118	0,0098	0,0098	0,0124	0,0051	0,0124	1,43	0,18	0,18
2015	8	23,33	1,35	1,35	195,0	11,0	11,0	0,1202	0,0089	0,0089	0,0100	0,0042	0,0100	1,32	0,16	0,16
2015	9	26,97	1,51	1,51	155,4	8,5	8,5	0,0730	0,0074	0,0074	0,0144	0,0046	0,0046	1,38	0,17	0,17
2015	10	9,74	0,64	0,64	68,3	4,0	4,0	0,0345	0,0068	0,0068	0,0125	0,0052	0,0125	2,51	0,22	0,22
2015	11	41,88	2,33	2,33	113,9	6,2	6,2	0,0732	0,0111	0,0111	0,0208	0,0086	0,0208	6,50	0,44	0,44
2015	12	4,58	0,51	0,51	11,5	1,2	1,2	0,0105	0,0044	0,0105	0,0061	0,0025	0,0061	0,21	0,09	0,21
2016	1	11,20	0,80	0,80	31,9	2,1	2,1	0,0518	0,0078	0,0078	0,0108	0,0045	0,0108	0,23	0,09	0,23
2016	2	16,77	0,95	0,95	103,3	5,5	5,5	0,0418	0,0072	0,0072	0,0250	0,0072	0,0072	0,60	0,16	0,16
2016	3	16,10	0,98	0,98	55,5	3,3	3,3	0,0329	0,0060	0,0060	0,0058	0,0024	0,0058	0,19	0,08	0,19
2016	4	27,87	1,60	1,60	97,5	5,5	5,5	0,0348	0,0056	0,0056	0,0131	0,0054	0,0131	1,44	0,18	0,18
2016	5	20,52	1,31	1,31	107,6	6,6	6,6	0,0440	0,0073	0,0073	0,0213	0,0068	0,0068	2,67	0,24	0,24
2016	6	10,98	0,60	0,60	155,8	8,4	8,4	0,0459	0,0092	0,0092	0,0306	0,0054	0,0054	1,92	0,18	0,18
2016	7	15,00	0,80	0,80	255,4	13,4	13,4	0,0299	0,0094	0,0094	0,0481	0,0078	0,0078	1,28	0,17	0,17
2016	8	4,97	0,31	0,31	80,5	4,8	4,8	0,0167	0,0069	0,0167	0,0240	0,0071	0,0071	0,85	0,17	0,17
2016	9	8,44	0,49	0,49	92,9	5,2	5,2	0,0333	0,0097	0,0097	0,0123	0,0051	0,0123	2,41	0,22	0,22
2016	10	14,36	0,88	0,88	77,8	4,1	4,1	0,0259	0,0040	0,0040	0,0065	0,0027	0,0065	2,77	0,19	0,19
2016	11	12,09	0,79	0,79	34,8	2,1	2,1	0,0082	0,0034	0,0082	0,0117	0,0049	0,0117	3,09	0,27	0,27
2016	12	3,78	0,47	0,47	10,5	0,7	0,7	0,0081	0,0033	0,0081	0,0071	0,0029	0,0071	1,26	0,15	0,15

Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych miesięcznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego. Stężenie aktywności [Bq/m³].

Rok	Nr	Pb-210			Be-7			Cs-137			Na-22			K-40		
		C	dC +	dC -	C	dC +	dC -	C	dC +	dC -	C	dC +	dC -	C	dC +	dC -
2009	2	346	25	25	1173	67	67	0,69	0,15	0,15	0,36	0,15	0,36	25,1	4,2	4,2
2009	3	154	12	12	1934	103	103	0,51	0,10	0,10	0,23	0,09	0,23	11,0	2,5	2,5
2009	4	185	10	10	2532	96	96	0,89	0,07	0,07	0,26	0,07	0,12	16,6	1,7	1,7
2009	5	217	15	15	3131	161	161	1,26	0,11	0,11	0,30	0,09	0,09	22,1	2,2	2,2
2009	6	151	10	10	3029	153	153	0,39	0,04	0,04	0,42	0,06	0,06	9,0	1,1	1,1
2009	7	176	11	11	3603	186	186	0,31	0,05	0,05	0,45	0,07	0,07	12,3	1,6	1,6
2009	8	78	9	9	1046	56	56	0,27	0,08	0,08	0,55	0,12	0,12	6,4	2,3	2,3
2009	9	208	19	19	2987	168	168	0,23	0,23	0,23	0,39	0,16	0,39	25,2	4,2	4,2
2009	10	171	13	13	1325	69	69	0,11	0,11	0,11	0,12	0,05	0,12	3,0	3,0	3,0
2009	11	91	8	8	868	45	45	0,07	0,07	0,07	0,10	0,04	0,10	2,0	2,0	2,0
2009	12	493	31	31	1520	82	82	1,00	0,18	0,18	0,32	0,13	0,32	34,7	4,3	4,3
2010	1	532	49	49	2449	187	187	0,39	0,39	0,39	1,03	0,30	0,30	10,9	10,9	10,9
2010	2	471	29	29	1580	87	87	0,57	0,11	0,11	0,33	0,11	0,11	17,3	3,0	3,0
2010	3	99	9	9	1337	73	73	0,49	0,16	0,16	0,48	0,39	0,39	13,6	3,7	3,7
2010	4	76	7	7	1263	65	65	0,34	0,06	0,06	0,40	0,08	0,08	5,9	1,7	1,7
2010	5	54	4	4	2239	113	113	0,27	0,05	0,05	0,37	0,17	0,17	4,3	1,1	1,1
2010	6	95	6	6	1950	99	99	0,48	0,07	0,07	0,43	0,24	0,24	11,0	1,5	1,5
2010	7	91	6	6	3452	176	176	0,45	0,09	0,09	0,43	0,26	0,26	5,7	1,8	1,8
2010	8	146	9	9	3793	193	193	0,45	0,09	0,09	0,18	0,15	0,15	10,6	1,7	1,7
2010	9	67	5	5	1920	100	100	0,29	0,08	0,08	0,23	0,16	0,16	9,6	1,5	1,5

2010	10	133	25	25	1876	161	161	0,55	0,55	0,55	0,65	0,27	0,65	39,3	13,0	13,0
2010	11	115	7	7	949	56	56	0,59	0,09	0,09	0,65	0,20	0,20	13,7	1,8	1,8
2010	12	115	7	7	949	56	56	0,59	0,09	0,09	0,65	0,20	0,20	13,7	1,8	1,8
2011	1	115	7	7	949	56	56	0,59	0,09	0,09	0,65	0,20	0,20	13,7	1,8	1,8
2011	2	543	61	61	1280	108	108	1,54	0,33	0,33	0,58	0,24	0,58	41,1	9,1	9,1
2011	3	57	24	57	768	68	68	3,22	0,96	0,96	1,33	0,55	1,33	22,5	22,5	22,5
2011	4	230	14	14	1282	57	57	0,52	0,09	0,09	0,16	0,07	0,16	4,0	4,0	4,0
2011	5	283	16	16	1797	92	92	3,32	0,19	0,19	0,18	0,06	0,06	27,7	2,1	2,1
2011	6	106	10	10	1873	97	97	0,70	0,08	0,08	0,39	0,09	0,09	21,4	2,1	2,1
2011	7	175	10	10	2596	132	132	0,57	0,11	0,11	0,13	0,05	0,13	7,1	1,7	1,7
2011	8	146	11	11	1173	62	62	0,25	0,25	0,25	0,29	0,24	0,24	4,7	4,7	4,7
2011	9	96	31	31	312	29	29	3,04	0,96	0,96	1,96	1,60	1,60	22,0	22,0	22,0
2011	10	177	51	51	273	39	39	0,48	0,48	0,48	1,20	0,50	1,20	19,4	19,4	19,4
2011	11	343	37	37	1473	158	158	1,80	0,59	0,59	0,79	0,33	0,79	90,7	15,0	15,0
2011	12	309	21	21	295	17	17	0,77	0,13	0,13	0,14	0,06	0,14	64,2	5,1	5,1
2012	1	268	17	17	1353	72	72	0,63	0,09	0,09	0,11	0,05	0,11	35,9	3,0	3,0
2012	2	198	15	15	1033	57	57	0,47	0,10	0,10	0,20	0,08	0,20	34,1	3,5	3,5
2012	3	221	23	23	1205	82	82	1,28	0,23	0,23	0,48	0,20	0,48	38,9	6,4	6,4
2012	4	150	11	11	1968	105	105	0,44	0,08	0,08	0,54	0,11	0,11	11,3	2,4	2,4
2012	5	121	9	9	931	51	51	0,89	0,10	0,10	0,24	0,08	0,08	40,0	3,1	3,1
2012	6	133	9	9	1951	101	101	0,31	0,06	0,06	0,22	0,08	0,08	10,6	1,6	1,6
2012	7	582	35	35	2763	154	154	0,56	0,10	0,10	0,52	0,15	0,15	42,0	4,0	4,0
2012	8	503	27	27	1356	71	71	0,27	0,05	0,05	0,19	0,06	0,06	38,2	2,7	2,7
2012	9	344	22	22	741	43	43	0,36	0,08	0,08	0,13	0,06	0,13	29,8	3,5	3,5
2012	10	327	19	19	876	46	46	0,46	0,07	0,07	0,20	0,08	0,20	40,1	3,0	3,0
2012	11	475	30	30	578	32	32	0,80	0,13	0,13	0,26	0,11	0,26	74,5	5,5	5,5
2012	12	742	46	46	1001	58	58	0,82	0,14	0,14	0,28	0,12	0,28	45,7	4,7	4,7
2013	1	117	8	8	1236	65	65	0,37	0,11	0,11	0,40	0,19	0,19	11,9	2,6	2,6
2013	2	233	16	16	1036	65	65	1,81	0,28	0,28	0,45	0,19	0,45	5,3	5,3	5,3
2013	3	321	19	19	1265	72	72	1,84	0,21	0,21	0,73	0,28	0,28	19,6	3,6	3,6
2013	4	107	15	15	1024	67	67	1,09	0,32	0,32	0,54	0,22	0,54	8,8	8,8	8,8
2013	5	140	8	8	1893	97	97	0,77	0,10	0,10	0,49	0,15	0,15	25,9	2,2	2,2
2013	6	67	4	4	1203	60	60	0,16	0,04	0,04	0,25	0,08	0,08	3,8	0,9	0,9
2013	7	107	10	10	2289	127	127	0,27	0,27	0,27	0,97	0,33	0,33	5,4	5,4	5,4
2013	8	273	20	20	3289	186	186	1,30	0,26	0,26	1,20	0,44	0,44	37,5	5,9	5,9
2013	9	142	9	9	1795	93	93	0,13	0,13	0,13	0,22	0,09	0,22	3,4	3,4	3,4
2013	10	118	16	16	956	63	63	0,39	0,39	0,39	0,56	0,23	0,56	122,0	11,6	11,6
2013	11	152	12	12	906	48	48	0,23	0,23	0,23	0,32	0,13	0,32	36,1	4,6	4,6
2013	12	142	16	16	669	48	48	1,64	0,45	0,45	0,32	0,09	0,22	52,6	9,3	9,3
2014	1	317	20	20	1968	107	107	1,08	0,22	0,22	0,32	0,13	0,32	12,3	3,9	3,9
2014	2	318	22	22	898	56	56	1,06	0,27	0,27	0,47	0,20	0,47	7,0	7,0	7,0
2014	3	78	10	10	429	27	27	0,48	0,48	0,48	0,38	0,16	0,38	17,1	5,4	5,4
2014	4	163	16	16	550	38	38	0,79	0,25	0,25	0,57	0,23	0,57	28,9	7,9	7,9
2014	5	158	9	9	2068	203	203	1,40	0,12	0,12	0,32	0,12	0,12	45,5	3,3	3,3
2014	6	102	8	8	1721	114	114	0,34	0,10	0,10	0,31	0,13	0,31	7,5	3,1	3,1

2014	7	56	4	4	903	75	75	0,37	0,07	0,07	0,37	0,09	0,09	8,4	1,4	1,4
2014	8	57	4	4	2239	115	115	0,23	0,04	0,04	0,10	0,04	0,10	4,6	1,6	1,6
2014	9	127	8	8	2333	123	123	0,53	0,08	0,08	0,32	0,09	0,09	48,5	3,8	3,8
2014	10	119	11	11	955	102	102	0,32	0,32	0,32	1,34	0,38	0,38	53,2	6,4	6,4
2014	11	110	9	9	613	52	52	0,69	0,18	0,18	0,30	0,12	0,30	59,6	5,6	5,6
2014	12	255	18	18	1465	87	87	0,86	0,20	0,20	0,29	0,12	0,29	35,3	5,7	5,7
2015	1	261	18	18	1606	90	90	0,24	0,24	0,24	0,37	0,16	0,37	23,3	4,9	4,9
2015	2	99	9	9	659	36	36	0,16	0,16	0,16	0,25	0,10	0,25	4,1	4,1	4,1
2015	3	313	21	21	1154	65	65	0,71	0,22	0,22	0,43	0,18	0,43	6,2	6,2	6,2
2015	4	229	15	15	1309	73	73	0,64	0,20	0,20	0,40	0,17	0,40	28,5	4,3	4,3
2015	5	260	14	14	2066	106	106	0,62	0,13	0,13	0,46	0,11	0,11	11,5	2,2	2,2
2015	6	456	27	27	3385	182	182	1,91	0,27	0,27	0,38	0,16	0,38	32,5	4,6	4,6
2015	7	320	18	18	2134	115	115	2,55	0,22	0,22	0,28	0,12	0,28	32,6	4,0	4,0
2015	8	467	25	25	3900	207	207	2,40	0,17	0,17	0,20	0,08	0,20	26,3	3,2	3,2
2015	9	439	23	23	2531	132	132	1,19	0,12	0,12	0,23	0,07	0,07	22,5	2,7	2,7
2015	10	222	14	14	1558	84	84	0,79	0,15	0,15	0,28	0,12	0,28	57,2	4,8	4,8
2015	11	601	32	32	1634	85	85	1,05	0,16	0,16	0,30	0,12	0,30	93,3	6,1	6,1
2015	12	326	30	30	819	67	67	0,53	0,53	0,53	0,43	0,18	0,43	10,4	10,4	10,4
2016	1	387	25	25	1104	65	65	1,79	0,26	0,26	0,37	0,15	0,37	5,5	5,5	5,5
2016	2	185	10	10	1137	58	58	0,46	0,08	0,08	0,28	0,08	0,08	6,6	1,7	1,7
2016	3	375	21	21	1291	70	70	0,77	0,14	0,14	0,13	0,06	0,13	3,2	3,2	3,2
2016	4	529	29	29	1853	98	98	0,66	0,11	0,11	0,25	0,10	0,25	27,3	3,3	3,3
2016	5	557	33	33	2920	162	162	1,19	0,20	0,20	0,58	0,18	0,18	72,5	6,3	6,3
2016	6	158	8	8	2248	116	116	0,66	0,13	0,13	0,44	0,08	0,08	27,7	2,6	2,6
2016	7	158	8	8	2696	137	137	0,32	0,10	0,10	0,51	0,08	0,08	13,5	1,8	1,8
2016	8	119	7	7	1931	105	105	0,28	0,28	0,28	0,58	0,17	0,17	20,3	4,0	4,0
2016	9	160	9	9	1765	93	93	0,63	0,18	0,18	0,23	0,10	0,23	45,9	4,0	4,0
2016	10	142	9	9	771	39	39	0,26	0,04	0,04	0,06	0,03	0,06	27,5	1,8	1,8
2016	11	276	17	17	794	45	45	0,13	0,13	0,13	0,27	0,11	0,27	70,5	6,0	6,0
2016	12	123	15	15	341	20	20	0,19	0,19	0,19	0,23	0,10	0,23	40,9	4,7	4,7

Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych. Stężenie aktywności [Bq/m³].

Rok	Nr	Pu-239+240			Pu-238			Początek poboru	Koniec poboru
		C	dC+	dC-	C	dC+	dC-		
2010	1	6,24E-10	1,84E-10	1,84E-10	1,73E-10	1,73E-10	1,73E-10	2010-01-04	2010-02-01
2010	2	2,67E-10	1,02E-10	1,02E-10	1,10E-10	1,10E-10	1,10E-10	2010-02-01	2010-03-01
2010	3	1,57E-09	1,91E-10	1,91E-10	2,35E-10	8,05E-11	8,05E-11	2010-03-01	2010-03-29
2010	4	2,39E-09	2,35E-10	2,35E-10	2,32E-10	6,87E-11	6,87E-11	2010-03-29	2010-04-26
2010	5	1,32E-09	1,28E-10	1,28E-10	5,48E-11	5,48E-11	5,48E-11	2010-04-26	2010-05-24
2010	6	2,02E-09	2,26E-10	2,26E-10	7,17E-11	7,17E-11	7,17E-11	2010-05-24	2010-06-21
2010	7	2,37E-09	1,94E-10	1,94E-10	9,07E-11	4,54E-11	4,54E-11	2010-06-21	2010-07-19
2010	8	1,08E-09	1,10E-10	1,10E-10	3,61E-10	6,18E-11	6,18E-11	2010-07-19	2010-08-16

2010	9	8,24E-10	9,36E-11	9,36E-11	1,10E-10	3,72E-11	3,72E-11	2010-08-16	2010-09-13
2010	10	1,70E-09	1,87E-10	1,87E-10	7,23E-10	1,33E-10	1,33E-10	2010-09-13	2010-10-11
2010	11	8,72E-10	9,88E-11	9,88E-11	4,99E-11	4,99E-11	4,99E-11	2010-10-11	2010-11-08
2010	12	1,35E-09	1,92E-10	1,92E-10	9,81E-11	9,81E-11	9,81E-11	2010-11-08	2010-12-06
2010	13	3,48E-10	1,07E-10	1,07E-10	1,25E-10	1,25E-10	1,25E-10	2010-12-06	2011-01-03
2011	1	1,16E-10	1,16E-10	1,16E-10	1,16E-10	1,16E-10	1,16E-10	2011-01-03	2011-01-31
2011	2	1,94E-09	2,40E-10	2,40E-10	1,27E-10	1,27E-10	1,27E-10	2011-01-31	2011-02-28
2011	3	2,68E-09	3,14E-10	3,14E-10	1,45E-10	1,45E-10	1,45E-10	2011-02-28	2011-03-21
2011	4	2,37E-09	1,97E-10	1,97E-10	1,28E-10	7,66E-11	7,66E-11	2011-04-25	2011-05-23
2011	5	3,03E-09	2,00E-10	2,00E-10	1,28E-10	4,24E-11	4,24E-11	2011-05-23	2011-06-20
2011	6	2,04E-09	1,61E-10	1,61E-10	3,75E-10	5,85E-11	5,85E-11	2011-06-20	2011-07-18
2011	7	1,02E-09	9,99E-11	9,99E-11	4,85E-11	4,85E-11	4,85E-11	2011-07-18	2011-08-15
2011	8	4,45E-09	2,98E-10	2,98E-10	2,02E-10	5,46E-11	5,46E-11	2011-08-15	2011-09-12
2011	9	4,16E-09	2,86E-10	2,86E-10	3,58E-10	6,85E-11	6,85E-11	2011-09-12	2011-10-10
2011	10	1,07E-09	1,33E-10	1,33E-10	6,94E-11	6,94E-11	6,94E-11	2011-10-10	2011-11-07
2011	11	3,03E-09	3,68E-10	3,68E-10	1,79E-10	1,79E-10	1,79E-10	2011-11-07	2011-12-05
2011	12	3,48E-10	7,45E-11	7,45E-11	8,50E-11	8,50E-11	8,50E-11	2011-12-05	2012-01-02
2012	1	5,96E-10	1,08E-10	1,08E-10	7,92E-11	7,92E-11	7,92E-11	2012-01-02	2012-01-30
2012	2	1,41E-09	2,59E-10	2,59E-10	8,26E-10	1,99E-10	1,99E-10	2012-01-30	2012-02-27
2012	3	2,45E-09	2,44E-10	2,44E-10	9,78E-11	9,78E-11	9,78E-11	2012-02-27	2012-03-26
2012	4	3,29E-09	2,63E-10	2,63E-10	2,15E-10	1,16E-10	1,16E-10	2012-03-26	2012-04-23
2012	5	3,49E-09	2,89E-10	2,89E-10	1,92E-10	6,34E-11	6,34E-11	2012-04-23	2012-05-21
2012	6	4,44E-09	4,10E-10	4,10E-10	9,78E-11	9,78E-11	9,78E-11	2012-05-21	2012-06-18
2012	7	5,03E-09	3,21E-10	3,21E-10	2,16E-10	5,81E-11	5,81E-11	2012-06-18	2012-07-16
2012	8	5,56E-09	5,16E-10	5,16E-10	3,03E-10	1,27E-10	1,27E-10	2012-07-16	2012-08-13
2012	9	3,53E-09	3,36E-10	3,36E-10	9,17E-11	9,17E-11	9,17E-11	2012-08-13	2012-09-10
2012	10	3,72E-09	2,72E-10	2,72E-10	3,16E-10	8,00E-11	8,00E-11	2012-09-10	2012-10-08
2012	11	1,30E-09	1,78E-10	1,78E-10	9,88E-11	9,88E-11	9,88E-11	2012-10-08	2012-11-05
2012	12	1,01E-09	1,40E-10	1,40E-10	7,96E-11	7,96E-11	7,96E-11	2012-11-05	2012-12-03
2012	13	1,11E-09	1,58E-10	1,58E-10	1,13E-10	1,13E-10	1,13E-10	2012-12-03	2012-12-31
2013	1	1,05E-10	1,05E-10	1,05E-10	1,05E-10	1,05E-10	1,05E-10	2012-12-31	2013-01-28
2013	2	1,03E-10	1,03E-10	1,03E-10	1,03E-10	1,03E-10	1,03E-10	2013-01-28	2013-02-25
2013	3	1,07E-09	1,29E-10	1,29E-10	7,99E-11	7,99E-11	7,99E-11	2013-02-25	2013-03-25
2013	4	2,27E-09	2,07E-10	2,07E-10	8,36E-11	8,36E-11	8,36E-11	2013-03-25	2013-04-22
2013	5	4,37E-09	2,97E-10	2,97E-10	1,41E-10	4,90E-11	4,90E-11	2013-04-22	2013-05-20
2013	6	1,25E-09	1,13E-10	1,13E-10	1,90E-10	4,44E-11	4,44E-11	2013-05-20	2013-06-17
2013	7	2,05E-09	1,94E-10	1,94E-10	5,92E-11	5,92E-11	5,92E-11	2013-06-17	2013-07-15
2013	8	2,28E-09	2,07E-10	2,07E-10	6,25E-11	6,25E-11	6,25E-11	2013-07-15	2013-08-12
2013	9	5,06E-09	4,14E-10	4,14E-10	2,16E-10	7,18E-11	7,18E-11	2013-08-12	2013-09-09
2013	10	4,33E-09	2,89E-10	2,89E-10	4,87E-11	4,87E-11	4,87E-11	2013-09-09	2013-10-07
2013	11	1,91E-09	2,02E-10	2,02E-10	7,47E-11	7,47E-11	7,47E-11	2013-10-07	2013-11-04
2013	12	1,91E-09	1,68E-10	1,68E-10	6,70E-11	6,70E-11	6,70E-11	2013-11-04	2013-12-02
2013	13	1,87E-09	2,05E-10	2,05E-10	8,09E-11	8,09E-11	8,09E-11	2013-12-02	2013-12-30
2014	1	8,09E-10	1,18E-10	1,18E-10	6,81E-11	6,81E-11	6,81E-11	2013-12-30	2014-01-27
2014	2	1,88E-09	1,88E-10	1,88E-10	7,56E-11	7,56E-11	7,56E-11	2014-01-27	2014-02-24

2014	3	3,84E-09	3,31E-10	3,31E-10	9,35E-11	9,35E-11	9,35E-11	2014-02-24	2014-03-10
2014	4	1,76E-09	2,13E-10	2,13E-10	1,05E-10	1,05E-10	1,05E-10	2014-03-31	2014-04-21
2014	5	1,61E-09	1,83E-10	1,83E-10	8,29E-11	8,29E-11	8,29E-11	2014-04-21	2014-05-19
2014	6	1,50E-09	2,09E-10	2,09E-10	1,06E-10	1,06E-10	1,06E-10	2014-05-19	2014-06-16
2014	7	1,44E-09	1,64E-10	1,64E-10	9,27E-11	9,27E-11	9,27E-11	2014-06-16	2014-07-14
2014	8	2,30E-09	2,38E-10	2,38E-10	2,28E-10	1,01E-10	1,01E-10	2014-07-14	2014-08-11
2014	9	1,35E-09	1,67E-10	1,67E-10	9,56E-11	9,56E-11	9,56E-11	2014-08-11	2014-09-08
2014	10	2,22E-09	2,20E-10	2,20E-10	1,01E-10	1,01E-10	1,01E-10	2014-09-08	2014-10-06
2014	11	1,42E-09	1,29E-10	1,29E-10	1,56E-10	4,77E-11	4,77E-11	2014-10-06	2014-11-03
2014	12	1,45E-09	1,29E-10	1,29E-10	5,44E-11	5,44E-11	5,44E-11	2014-11-03	2014-12-01
2015	1	4,04E-10	7,35E-11	7,35E-11	5,63E-11	5,63E-11	5,63E-11	2014-12-29	2015-01-26
2015	2	5,19E-10	8,94E-11	8,94E-11	3,52E-10	7,73E-11	7,73E-11	2015-01-26	2015-02-23
2015	3	1,79E-09	1,79E-10	1,79E-10	6,22E-11	6,22E-11	6,22E-11	2015-02-23	2015-03-23
2015	4	3,24E-09	2,62E-10	2,62E-10	1,27E-09	1,44E-10	1,44E-10	2015-03-23	2015-04-20
2015	5	4,88E-09	3,57E-10	3,57E-10	2,08E-10	5,64E-11	5,64E-11	2015-04-20	2015-05-18
2015	6	1,84E-09	1,77E-10	1,77E-10	6,13E-11	6,13E-11	6,13E-11	2015-05-18	2015-06-15
2015	7	1,83E-09	1,67E-10	1,67E-10	5,35E-11	5,35E-11	5,35E-11	2015-06-15	2015-07-13
2015	8	1,50E-09	1,35E-10	1,35E-10	1,00E-10	4,01E-11	4,01E-11	2015-07-13	2015-08-10
2015	9	1,31E-08	7,33E-10	7,33E-10	4,17E-10	8,28E-11	8,28E-11	2015-08-10	2015-09-07
2015	10	1,92E-09	1,80E-10	1,80E-10	5,32E-11	5,32E-11	5,32E-11	2015-09-07	2015-10-05
2015	11	3,37E-09	2,49E-10	2,49E-10	1,76E-10	6,16E-11	6,16E-11	2015-10-05	2015-11-02
2015	12	5,38E-10	9,72E-11	9,72E-11	6,38E-11	6,38E-11	6,38E-11	2015-11-02	2015-11-30
2015	13	1,18E-09	1,79E-10	1,79E-10	9,94E-11	9,94E-11	9,94E-11	2015-11-30	2015-12-21
2016	1	2,26E-09	1,97E-10	1,97E-10	6,97E-11	6,97E-11	6,97E-11	2015-12-28	2016-01-25
2016	2	7,25E-10	1,01E-10	1,01E-10	5,85E-11	5,85E-11	5,85E-11	2016-01-25	2016-02-22
2016	3	1,25E-09	1,33E-10	1,33E-10	5,45E-11	5,45E-11	5,45E-11	2016-02-22	2016-03-21
2016	4	2,15E-09	1,97E-10	1,97E-10	1,54E-10	5,51E-11	5,51E-11	2016-03-21	2016-04-18
2016	5	1,24E-09	1,22E-10	1,22E-10	4,41E-11	4,41E-11	4,41E-11	2016-04-18	2016-05-16
2016	6	1,53E-09	1,44E-10	1,44E-10	5,18E-11	5,18E-11	5,18E-11	2016-05-16	2016-06-13
2016	7	1,55E-09	1,37E-10	1,37E-10	4,72E-11	4,72E-11	4,72E-11	2016-06-13	2016-07-11
2016	8	7,26E-10	8,73E-11	8,73E-11	4,41E-11	4,41E-11	4,41E-11	2016-07-11	2016-08-08
2016	9	1,31E-09	1,28E-10	1,28E-10	5,45E-11	5,45E-11	5,45E-11	2016-08-08	2016-09-05
2016	10	2,82E-09	2,26E-10	2,26E-10	1,14E-10	5,00E-11	5,00E-11	2016-09-05	2016-10-03
2016	11	8,49E-10	9,97E-11	9,97E-11	5,44E-11	5,44E-11	5,44E-11	2016-10-03	2016-10-31
2016	12	1,70E-09	1,73E-10	1,73E-10	6,26E-11	6,26E-11	6,26E-11	2016-10-31	2016-11-28
2016	13	1,93E-10	5,82E-11	5,82E-11	6,02E-11	6,02E-11	6,02E-11	2016-11-28	2017-01-02

Wyniki pomiarów alfa spektrometrycznych próbek całkowitego opadu atmosferycznego. Stężenie [Bq/m³] i depozycja aktywności [Bq/m²].

Rok	Nr	Pu-239+240						Pu-238					
		C	dC +	dC-	D	dD+	dD-	C	dC +	dC-	D	dD+	dD-
2010	1	0,0040	0,0010	0,0010	6,20E-05	1,53E-05	1,53E-05	0,0010	0,0010	0,0010	2,25E-05	9,31E-06	2,25E-05
2010	2	0,0031	0,0005	0,0005	1,21E-04	1,85E-05	1,85E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,69E-05	6,98E-06	1,69E-05

2014	2	0,0281	0,0021	0,0021	7,63E-04	5,28E-05	5,28E-05	0,0005	0,0005	0,0005	1,79E-05	7,42E-06	1,79E-05
2014	3	0,0102	0,0008	0,0008	3,26E-04	2,58E-05	2,58E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,25E-05	5,16E-06	1,25E-05
2014	4	0,1770	0,0108	0,0108	3,88E-03	1,84E-04	1,84E-04	0,0019	0,0006	0,0006	4,26E-05	1,40E-05	1,40E-05
2014	5	0,0244	0,0014	0,0014	2,05E-03	1,17E-04	1,17E-04	0,0007	0,0002	0,0002	5,49E-05	1,81E-05	1,81E-05
2014	6	0,0090	0,0008	0,0008	4,59E-04	4,15E-05	4,15E-05	0,0014	0,0003	0,0003	7,04E-05	1,52E-05	1,52E-05
2014	7	0,0031	0,0003	0,0003	4,39E-04	3,68E-05	3,68E-05	0,0001	0,0001	0,0001	1,84E-05	7,64E-06	1,84E-05
2014	8	0,0056	0,0005	0,0005	4,92E-04	4,17E-05	4,17E-05	0,0002	0,0002	0,0002	1,88E-05	7,78E-06	1,88E-05
2014	9	0,0056	0,0006	0,0006	2,97E-04	3,14E-05	3,14E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,91E-05	7,91E-06	1,91E-05
2014	10	0,0076	0,0009	0,0009	2,55E-04	2,96E-05	2,96E-05	0,0004	0,0004	0,0004	1,95E-05	8,07E-06	1,95E-05
2014	11	0,0039	0,0006	0,0006	1,40E-04	2,07E-05	2,07E-05	0,0004	0,0004	0,0004	2,02E-05	8,36E-06	2,02E-05
2014	12	0,0088	0,0010	0,0010	2,55E-04	2,81E-05	2,81E-05	0,0004	0,0004	0,0004	1,70E-05	7,02E-06	1,70E-05
2015	1	0,0066	0,0007	0,0007	2,47E-04	2,77E-05	2,77E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,81E-05	7,50E-06	1,81E-05
2015	2	0,0055	0,0006	0,0006	2,49E-04	2,68E-05	2,68E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,90E-05	7,86E-06	1,90E-05
2015	3	0,0063	0,0007	0,0007	2,26E-04	2,48E-05	2,48E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,77E-05	7,34E-06	1,77E-05
2015	4	0,0087	0,0009	0,0009	4,24E-04	4,36E-05	4,36E-05	0,0003	0,0003	0,0003	2,33E-05	9,66E-06	2,33E-05
2015	5	0,0049	0,0008	0,0008	4,14E-04	6,47E-05	6,47E-05	0,0006	0,0006	0,0006	7,19E-05	2,98E-05	7,19E-05
2015	6	0,0091	0,0008	0,0008	4,23E-04	3,70E-05	3,70E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,82E-05	7,54E-06	1,82E-05
2015	7	0,0204	0,0014	0,0014	8,95E-04	5,96E-05	5,96E-05	0,0008	0,0002	0,0002	3,33E-05	1,04E-05	1,04E-05
2015	8	0,0112	0,0010	0,0010	5,62E-04	5,14E-05	5,14E-05	0,0003	0,0003	0,0003	2,24E-05	9,27E-06	2,24E-05
2015	9	0,0062	0,0006	0,0006	3,83E-04	3,43E-05	3,43E-05	0,0002	0,0002	0,0002	1,78E-05	7,36E-06	1,78E-05
2015	10	0,0031	0,0005	0,0005	1,35E-04	2,07E-05	2,07E-05	0,0003	0,0003	0,0003	2,02E-05	8,38E-06	2,02E-05
2015	11	0,0081	0,0007	0,0007	5,64E-04	5,02E-05	5,02E-05	0,0002	0,0002	0,0002	2,35E-05	9,75E-06	2,35E-05
2015	12	0,0053	0,0013	0,0013	7,48E-05	1,73E-05	1,73E-05	0,0011	0,0011	0,0011	2,24E-05	9,28E-06	2,24E-05
2016	1	0,0104	0,0011	0,0011	2,08E-04	2,22E-05	2,22E-05	0,0005	0,0005	0,0005	1,41E-05	5,84E-06	1,41E-05
2016	2	0,0021	0,0003	0,0003	1,92E-04	2,32E-05	2,32E-05	0,0001	0,0001	0,0001	1,83E-05	7,60E-06	1,83E-05
2016	3	0,0045	0,0006	0,0006	1,92E-04	2,58E-05	2,58E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,95E-05	8,09E-06	1,95E-05
2016	4	0,0048	0,0006	0,0006	2,51E-04	2,91E-05	2,91E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,98E-05	8,19E-06	1,98E-05
2016	5	0,0040	0,0008	0,0008	1,48E-04	2,84E-05	2,84E-05	0,0006	0,0006	0,0006	3,15E-05	1,31E-05	3,15E-05
2016	6	0,0054	0,0005	0,0005	3,75E-04	3,62E-05	3,62E-05	0,0002	0,0002	0,0002	1,89E-05	7,81E-06	1,89E-05
2016	7	0,0022	0,0003	0,0003	2,06E-04	2,98E-05	2,98E-05	0,0002	0,0002	0,0002	2,81E-05	1,16E-05	2,81E-05
2016	8	0,0044	0,0006	0,0006	1,85E-04	2,48E-05	2,48E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,91E-05	7,91E-06	1,91E-05
2016	9	0,0032	0,0004	0,0004	1,71E-04	2,33E-05	2,33E-05	0,0003	0,0003	0,0003	2,02E-05	8,38E-06	2,02E-05
2016	10	0,0021	0,0003	0,0003	2,12E-04	2,54E-05	2,54E-05	0,0001	0,0001	0,0001	1,71E-05	7,09E-06	1,71E-05
2016	11	0,0027	0,0005	0,0005	1,18E-04	2,28E-05	2,28E-05	0,0004	0,0004	0,0004	2,49E-05	1,03E-05	2,49E-05
2016	12	0,0013	0,0003	0,0003	3,93E-05	1,02E-05	1,02E-05	0,0003	0,0003	0,0003	1,42E-05	5,88E-06	1,42E-05

6. Spis detektorów wykorzystanych w pomiarach gamma spektrometrycznych próbek aerozoli atmosferycznych

Nr	Opis	Mierzone izotopy	Geometria	Liczba pomiarów	Uwagi
1	Detektor HPGe Canberra BeGe 5030, ok. 50% wydajności względnej, kriostat standardowy, osłona od wewnątrz: 10 mm miedzi elektrolitycznej, 5 cm ołowiu mającego 2500 lat, 2 mm blachy kadmowej, 10 cm współczesnego ołowiu, 10 cm parafiny, od września 2018 roku osłona antykoincydencyjna w postaci pięciu detektorów scyntylacyjnych (największy o wymiarach 70 cm x70 cm) czułych na miony promieniowania kosmicznego	Cs-137	2FP	3	Powtarne pomiary
2	Detektor koaksjalny HPGe (tzw. "true coaxial") wyprodukowany w IFJ PAN (1998), 20% wydajności względnej, kriostat bez aluminium (stal nierdzewna, miedź i kompozyt węglowy), osłona od wewnątrz: 10 mm miedzi elektrolitycznej, 5 cm ołowiu mającego 2500 lat, 2 mm blachy kadmowej, 10 cm współczesnego ołowiu, 10 cm parafiny, w latach 2001-2010 od góry osłona antykoincydencyjna w postaci wielodrutowej komory Charpaka o wymiarach 70 cm x70 cm czułej na miony promieniowania kosmicznego	Pb-210 Na-22 Be-7 Cs-137 K-40	Dla próbek pobranych w latach 2005-2006 2FP, w latach 2007-2009 1FP	204	
3	Detektor koaksjalny HPGe prod. Silena (rok prod. 1991) o wydajności względnej 26%, osłona detektora: kształtki ołowiane: Pb: 200 mm (górną osłona Pb: 250 mm) oraz filtry RTG: płyty Fe: 3,0 mm, Cu: 1,0 mm, Cd: 1,8 mm	Cs-137	2FP	35	Powtarne pomiary
4	Detektor planarny HPGe prod. IFJ PAN (rok prod. 2007), z okienkiem kompozytowym, osłona od wewnątrz 0.5 cm akryl, 3 mm miedź elektrolityczna, 5 cm współczesny ołów	Be-7 K-40 Na-22 Pb-210	1FP	3	
5	Detektor koksjalny HPGe Ortec Pop-Top z okienkiem berylowym (rok prod. 1988) o wydajności względnej 30%, osłona od wewnątrz 5 mm blacha Cu, 20 cm stali dziewiętnastowiecznej	Pb-210 Na-22 Be-7 Cs-137 K-40	1FP	257	
6	Detektor koaksjalny HPGe prod. Silena (rok prod. 1991) o wydajności względnej 11 %, osłona od środka 20 mm miedzi elektrolitycznej, 2 mm blachy kadmowej, 10 cm współczesnego ołowiu	Cs-137	2FP	21	
7	Detektor koaksjalny HPGe prod. Silena (rok prod. 1991) o wydajności względnej 11 %, osłona od środka 20 mm miedzi elektrolitycznej, 2 mm blachy kadmowej, 10 cm współczesnego ołowiu	Pb-210 Na-22 Be-7 Cs-137 K-40	1FP	137	Dla Cs-137 dodatkowo 85 powtaranych pomiarów w geometrii 2FP