

**FAKULTA MATEMATIKY, FYZIKY A INFORMATIKY  
UNIVERZITY KOMENSKÉHO V BRATISLAVE**

**Katedra jadrovej fyziky**

**$^{14}\text{C}$  a  $^{222}\text{Rn}$  v prírodných médiách a ich využitie  
pre štúdium transportu ďalších plynov**

Písomná práca k dizertačnej skúške

Doktorand: Mgr. Ivana Bosá

Školiteľ: RNDr. Karol Holý, CSc.

Bratislava, 2001

# Obsah

<b>1</b>	<b>Prehľad súčasného stavu problematiky</b>	<b>3</b>
1.1	Úvod . . . . .	3
1.2	Základné vlastnosti a zdroje radónu . . . . .	4
1.3	Metódy merania objemovej aktivity $^{222}\text{Rn}$ . . . . .	6
1.3.1	Detektory používané na meranie objemovej aktivity $^{222}\text{Rn}$ . . . . .	6
1.4	$^{222}\text{Rn}$ vo vonkajšej atmosfére . . . . .	9
1.4.1	Denné variácie . . . . .	9
1.4.2	Sezónne variácie . . . . .	10
1.5	Využitie $^{222}\text{Rn}$ pre štúdium atmosferických procesov . . . . .	13
1.5.1	Vertikálna distribúcia radónu . . . . .	13
1.5.2	Určovanie ekvivalentnej zmiešavacej výšky . . . . .	16
1.5.3	Klasifikácia atmosferickej stability . . . . .	18
1.6	$^{14}\text{CO}_2$ v prírodných médiách . . . . .	21
1.6.1	$\text{CO}_2$ v prízemnej vrstve atmosféry . . . . .	22
1.6.2	$^{14}\text{CO}_2$ v prízemnej vrstve atmosféry . . . . .	24
<b>2</b>	<b>Projekt dizertačnej práce</b>	<b>27</b>
2.1	Ciele dizertačnej práce . . . . .	27
2.2	Dosiahnuté výsledky, návrhy riešenia úloh . . . . .	28
	<b>Zoznam použitej literatúry</b>	<b>34</b>

# 1 Prehľad súčasného stavu problematiky

## 1.1 Úvod

Rozvoj priemyslu a techniky so sebou priniesol mnohé nepriaznivé dopady na životné prostredie. Z tohoto dôvodu je neustále aktuálna potreba kontroly znečistenia ovzdušia a jeho negatívnych vplyvov na Zemskú biosféru.

Správanie sa škodlivín v prízemnej vrstve atmosféry je vo výraznej miere ovplyvňované rozptylovými podmienkami. Tieto sú v meteorológii charakterizované kategóriami stability, ktoré sa určujú pomocou súboru meteorologických prvkov. Štúdiom vzťahu medzi atmosferickou stabilitou a objemovou aktivitou radónu umožňuje popisovať procesy v prízemnej vrstve atmosféry na základe meraní objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$ . Jeho výhody oproti iným plynom sú:

- jeho exhalácia z pôdy do vonkajšej atmosféry je približne rovnomerná a jej veľkosť je počas roka takmer konštantná,
- je to inertný plyn a preto je jeho odstraňovanie z atmosféry ovplyvnené iba rádioaktívnym rozpadom,
- má dostatočne dlhý polčas rozpadu na to, aby sa difúziou dostal do vonkajšej atmosféry,
- objemovú aktivitu radónu vo vonkajšej atmosfére možno merať s dostatočnou presnosťou.

Koncentrácia  $^{14}\text{C}$  v atmosferickom  $\text{CO}_2$  v prízemnej vrstve atmosféry je ovplyvnená dvomi ľudskými aktivitami. Jadrové skúšky v atmosfére a prevádzka jadrových zariadení spôsobujú nárast koncentrácie  $^{14}\text{C}$ . Spaľovanie fosílnych palív s nulovým obsahom  $^{14}\text{CO}_2$  spôsobuje naopak pokles koncentrácie  $^{14}\text{C}$  v atmosferickom  $\text{CO}_2$ .

Výsledná hodnota  $\Delta^{14}\text{C}$  v prízemnej vrstve atmosféry je však výsledkom pôsobenia viacerých faktorov, jedným z nich je aj atmosferická stabilita. Tu sa ukazuje ako vhodný prostriedok pre odhad jednotlivých vplyvov simultánne meranie objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{14}\text{C}$  vo vonkajšej atmosfére, s meraniami exhalácie  $^{222}\text{Rn}$  z pôdy.

## 1.2 Základné vlastnosti a zdroje radónu

Radón je prírodný inertný rádioaktívny plyn, bez vône, chuti a zápachu. V porovnaní s ostatnými vzácnymi plynmi je najt'azší, má najvyšší bod topenia a varu. Je rozpustný v studenej vode a jeho rozpustnosť so stúpajúcou teplotou vody klesá. Napriek tomu, že je inertný plyn sú známe zlúčeniny radónu s fluórom, pretože má relatívne nízky ionizačný potenciál. Radón dobre absorbuje na aktívnom uhlí, čo sa využíva pri separácii radónu od ostatných plynov [3].

V súčasnej dobe je známych 24 izotopov radónu od  $^{200}\text{Rn}$  po  $^{226}\text{Rn}$ . V prírode sa vyskytujú tri z nich:  $^{219,220,222}\text{Rn}$  [1].

$^{219}\text{Rn}$  (aktinón) je člen aktíniového rozpadového radu, ktorý začína izotopom  $^{235}\text{U}$ . Koncentrácia  $^{235}\text{U}$  v pôde a horninách je menej ako 1% koncentrácie  $^{238}\text{U}$ . Toto v kombinácii s krátkym polčasom rozpadu  $^{219}\text{Rn}$  spôsobuje, že výskyt tohoto izotopu vo vonkajšej atmosfére je prakticky nemerateľný.

$^{220}\text{Rn}$  (torón) je člen tóriového rozpadového radu ( $^{232}\text{Th}$ ). Exhalačná rýchlosť  $^{220}\text{Rn}$  z pôdy je relatívne vysoká, no pre jeho krátky polčas rozpadu je veľmi málo prác, ktoré sa zaoberajú jeho meraním.

$^{222}\text{Rn}$  (pod pojmom radón sa rozumie práve tento izotop) je najdlhšie žijúci izotop, člen uránového rozpadového radu ( $^{238}\text{U}$ ). Exhalačná rýchlosť radónu z pôdy je 100x nižšia ako exhalačná rýchlosť  $^{220}\text{Rn}$ , ale jeho relatívne dlhý polčas rozpadu umožňuje pozorovať distribúciu v atmosfére [2].

Tabuľka 1: Izotopy radónu

Izotop	Rozpadový rad	Polčas rozpadu	Energia a intenzita $\alpha$ -častice[MeV]	
$^{219}\text{Rn}$	$^{235}\text{U}$	3,96 s	6,819	81%
			6,553	12%
$^{220}\text{Rn}$	$^{232}\text{Th}$	55,60 s	6,288	100%
$^{222}\text{Rn}$	$^{238}\text{U}$	3,82 d	5,490	100%

Rozpadové produkty radónu sú  $\alpha$ ,  $\beta$  alebo  $\gamma$ -žiarice. Pretože sú to všetko ťažké kovy, majú schopnosť zachytávať sa na aerosoloch a povrchoch stien, nábytku a pod. Takisto sa môžu zachytávať na stenách dýchacích ciest, kde pri postupnom rozpade zachytených jadier dochádza k poškodzovaniu tkaniva dýchacích ciest. V uzavretom prostredí nastane za tri hodiny rádioaktívna rovnováha medzi radónom a jeho rozpadovými produktami a energie emitovaného žiarenia.

$^{222}\text{Rn}$  sa nachádza všade tam, kde sa vyskytuje jeho materský rádionuklid  $^{226}\text{Ra}$ . Do atmosféry sa dostáva predovšetkým z pôdy. Obsah  $^{238}\text{U}$  v pôde a horninách je ~1-4%.  $^{226}\text{Ra}$  je zvyčajne v rádioaktívnej rovnováhe s  $^{238}\text{U}$ . Najväčší obsah uránu majú vyvreliny, najmenej obsahujú usadené horniny. Merná aktivita  $^{226}\text{Ra}$  v pôde je okolo  $40 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  [3].

Po rozpade svojho materského prvku  $^{226}\text{Ra}$  sa radón dostáva do pôdneho vzduchu a difúziou sa dostáva do vonkajšej atmosféry.

Ďalšími zdrojmi radónu vo vonkajšej atmosfére je povrchová a podzemná voda, predovšetkým taká, ktorá prichádza do styku s horninami obohatenými Ra; ropa, zemný plyn, spaľovanie uhlia.

Objemová aktivita Ra vo vode sa pohybuje v rozmedzí od 0,5 do  $50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , v morskej vode je to okolo  $4 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  [3].

Tabuľka 2 ukazuje ročné exhalácie  $^{222}\text{Rn}$  z jednotlivých zdrojov [1].

Tabuľka 2: Celková ročná exhalácia  $^{222}\text{Rn}$

Zdroj	Hodnota [Bq/rok]
Pôda	$7,4 \times 10^{19}$
Podzemná voda	$1,85 \times 10^{19}$
Oceány	$1,11 \times 10^{18}$
Odpad z fosfátových baní	$7,4 \times 10^{16}$
Odpad z uránových baní	$7,4 \times 10^{14}$
Odpad z uhoľných baní	$7,4 \times 10^{14}$
Zemný plyn	$3,7 \times 10^{14}$
Spaľovanie uhlia	$3,33 \times 10^{13}$

### 1.3 Metódy merania objemovej aktivity $^{222}\text{Rn}$

Radón v atmosfére možno merať priamo, meraním samotného radónu, alebo nepriamo meraním jeho rozpadových produktov. V súčasnosti sa viacej využívajú zariadenia merajúce radón, pretože sú jednoduchšie a cenovo výhodnejšie.

Ďalej rozlišujeme pasívne a aktívne metódy. Pasívnou metódou vzduch vchádza do objemu detektora difúziou, pri aktívnej metóde je zapojené čerpadlo, ktoré presáva vzduch cez objem detektora.

Merať aktivitu možno tromi spôsobmi: bodovými odbermi, integrálne alebo kontinuálne.

**Bodové odbery** Vzorka je kumulovaná počas krátkeho časového úseku, napr. 10min a analyzovaná zvyčajne v priebehu 4 hodín. Nameraná aktivita sa vzťahuje k počiatočnému času prečerpávania. V niektorých prípadoch môže byť vzorka analyzovaná priamo v teréne. Táto metóda je vhodná pri meraní lokálnych zdrojov radónu, v budovách a na preverenie správnosti merania a kalibráciu iných metód a techník merania. Na dlhodobšie merania je táto metóda nevhodná pre náročné spracovávanie vzoriek.

**Integrálne meranie** Meranie je prevádzané nepretržite počas dlhšieho obdobia a vedie k jedinej výslednej hodnote, ktorá predstavuje strednú hodnotu aktivity za sledované obdobie. Sú vhodné na meranie strednej hodnoty aktivity v obytných priestoroch, na odhad expozičnej dávky.

**Kontinuálne meranie** Metóda pri ktorej možno súčasne s prebiehajúcim meraním získavať výsledné objemové aktivity. Je to užitočné najmä v situáciách, kedy dochádza k náhlym a výrazným zmenám v objemovej aktivite a je potreba tieto zmeny sledovať. Taktiež je vhodná na meranie variácií objemovej aktivity vo vonkajšej atmosfére ako aj v obytných priestoroch.

#### 1.3.1 Detektory používané na meranie objemovej aktivity $^{222}\text{Rn}$

**Ionizačné komory** Väčšinou sa používajú cylindrické komory s centrálnou anódou pracujúce pri atmosferickom tlaku. Môžu byť prietokové alebo pracovať so stálou plynovou náplňou. Z nasávaného vzduchu sa odstraňujú aerosolové časti prostredníctvom filtra. Taktiež treba odstrániť vodnú paru [2].

**Scintilačné komory** Sú to svetelne nepriepustné nádoby, ktorých steny sú pokryté vrstvou scintilátora ZnS(Ag). Konverzia svetelných zábleskov na elektrický signál sa robí fotonásobičom. Sú vhodné na kontinuálne merania a aj merania uskutočnené na základe bodových odberov. Na bodové odbery sa dnes využívajú hlavne Lucasové komôrky, ktoré majú malý objem (od 0,1 po 1l) ale nízke pozadie a vysokú účinnosť. Na kontinuálne merania sa využívajú spravidla veľkoobjemové scintilačné komory [2]. Tieto detektory bývajú náročné na kalibráciu.

**Stopové detektory v pevnej fáze** Detektory na báze dielektrických materiálov, v ktorých  $\alpha$ -častice po dopade zanechávajú latentné stopy, ktoré možno zviditeľniť leptaním. Detektor je umiestnený v nádobe, do ktorej vchádza vzduch pasívnou difúziou cez filter, ktorý zachytáva rozpadové produkty radónu. Dráhy sa zviditeľňujú v alkalickom roztoku. Výhodou týchto detektorov je, že sú necitlivé na gama a beta žiarenie. Majú však malú citlivosť a preto sú vhodné hlavne na integrálne merania v dĺžke okolo troch mesiacov [2].

**Metóda aktívneho uhlia** Táto technika využíva absorpciu radónu na aktívnom uhlí. Do pracovného priestoru preniká vzduch pasívnou difúziou cez difúznú bariéru, ktorá znižuje efekt vodných pár. Aktivita sa určuje pomocou detekcie alfa, beta a gama žiarenia emitovaného rozpadovými produktami radónu.

Gama žiarenie sa detektuje scintilačným detektorom NaI(Tl), prípadne HPGe detektorom alfa a beta žiarenie spravidla plynovými detektormi [2]. Dĺžka expozície by nemala presahovať sedem dní.

Nový typ detektora na báze aktívneho uhlia, ktorý odstraňuje mnohé nedostatky tejto metódy navrhol M.Kubů [4].

**Elektret-ionizačná komora** Plastická komora s filtrom na vrchnej časti a elektretom na spodnej časti detektora. Pasívnou difúziou vchádza aktívny vzduch do objemu detektora. Radón a jeho rozpadové produkty sa rozpadajú a vznikajú nabité ióny, ktoré sa pôsobením elektrického poľa zhromažďujú na elektrete. Aktivita sa určuje z úbytku napätia na elektrete pred a po expozícii. Nevýhodou je nestabilita vo vlhkom prostredí [2].

**Dvojfiltrvá metóda** Aparatúra pozostáva z kovovej rúry, ktorá má na oboch koncoch vysokouúčinné filtre a z čerpadla, ktorým sa presáva vzduch cez detektor. Prvým

filtrum sa odfiltrujú aerosoly a rozpadové produkty radónu a do objemu detektora vstupuje iba samotný radón. Na druhom filtri sa zachytávajú rozpadové produkty, ktoré vznikli v objeme detektora. Aktivita filtra sa meria ZnS(Ag) scintilátorom [2].

Tabuľka 3: Porovnanie citlivosti detektorov na detekciu radónu [1]

Typ detektora	Použitie	Citlivosť
Scintilačná komora	Bodové a kontinuálne merania	$<3,7Bq/m^3$
Ionizačná komora	Bodové a kontinuálne merania	$<3,7Bq/m^3$
Aktívne uhlie	Integrálne merania	$7,4Bq/m^3$ na 100 hodín expozície
Stopové detektory	Integrálne merania	$<18,5Bq/m^3/mesiac$
Dvojfiltróva metóda	Bodové a kontinuálne merania	$<3,7Bq/m^3$



## 1.4 $^{222}\text{Rn}$ vo vonkajšej atmosfére

Do vonkajšej atmosféry sa radón dostáva exhaláciou z pôdy. Exhalačná rýchlosť  $^{222}\text{Rn}$  závisí od geologických parametrov, akými sú obsah  $^{226}\text{Ra}$  v pôde, difúzny koeficient, permeabilita pôdy. A od meteorologických prvkov ako tlak, teplota a vlhkosť vzduchu a pôdy [11].

Radón sa nepretržite dostáva do atmosféry exhaláciou z pôdy a nepretržite je z atmosféry odstraňovaný prostredníctvom rádioaktívneho rozpadu. Najvyššia koncentrácia je z tohto dôvodu na rozhraní zem–vzduch a so stúpajúcou výškou klesá. Rozpadové produkty sa ihneď po vzniku viažu na aerosolové častice v atmosfére. Transport týchto častíc je potom závislý od turbulentnej difúzie.

Priebeh objemovej aktivity radónu vykazuje pravidelné časové variácie [5, 6].

### 1.4.1 Denné variácie

Denné variácie sú všeobecne pripisované atmosferickej stabilite. Charakteristika dennej vlny objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  závisí predovšetkým od intenzity slnečného žiarenia a meteorologických prvkov náhodného charakteru.

Teplotná inverzia atmosféry v skorých ranných hodinách vedie k vysokej stabilite atmosféry, čo obmedzuje vertikálne turbulentné zmiešavanie a spôsobuje relatívne vyššie koncentrácie radónu v prízemnej vrstve atmosféry. Skoro po východe slnka sa začne zahrievať zem, ktorá následne zahrieva najnižšiu vrstvu atmosféry. Tým sa poruší inverzia a to vedie k značnému poklesu koncentrácie. Koncentrácia ostáva nízka až do neskorého poludnia, kedy ochladzovanie zemského povrchu spôsobí zvýšenie atmosferickej stability, čomu odpovedá zvýšenie koncentrácie radónu.

V lete dochádza k výraznejšiemu rozptylu aktivity radónu okolo priemernej hodnoty, amplitúda denného priebehu je výraznejšia. Naopak v zime je amplitúda veľmi nevýrazná a dochádza k vyhladeniu variácií. Maximum objemovej aktivity je dosahované v letných mesiacoch medzi 4–6 hod., minimum medzi 14–16 hod. V zimných mesiacoch nastáva mierny posun maxima, ktoré sa objavuje medzi 6–8 hod. a minimum ostáva medzi 14–16 hod. Priemerná hodnota sa dosahuje medzi 8–10 a 20–22 hodinou. Táto doba sa ukazuje ako najvhodnejšia na meranie priemerného ročného priebehu objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  metódou bodových odberov [31].

Pretože dáta, ktoré sú získané z merania aktivity vykazujú periodicitu, možno na vysvetlenie osobitostí dennej vlny použiť harmonickú analýzu. Túto analýzu využil vo svojej práci L. Garzon [9].

Na dosiahnutie chyby pri analýze menšej ako 4%, treba vziať do úvahy prvé dva členy Fourierovho rozvoja. Základný člen s 24-hodinovou periódou sa nazýva denná vlna a druhý člen s 12-hodinovou periódou sa nazýva semidenná (poldenná) vlna.

Dennú vlnu potom môžeme popísať funkciou [9]:

$$\frac{A_{Rn}(t) - \overline{A_{Rn}}}{\overline{A_{Rn}}} = A_1 \cos\left(\frac{2\pi}{24}t + \phi_1\right) + A_2 \cos\left(\frac{2\pi}{12}t + \phi_2\right) \quad (1)$$

kde

$A_{Rn}(t)$  – priemerná hodnota objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  v čase  $t$

$\overline{A_{Rn}}$  – priemerná mesačná hodnota objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$

$A_1$  – amplitúda prvej harmonickej zložky

$A_2$  – amplitúda druhej harmonickej zložky

$\phi_1$  – fázový posun prvej harmonickej zložky

$\phi_2$  – fázový posun druhej harmonickej zložky

V tejto rovnici prvá harmonická zložka charakterizuje turbulentnú výmenu spôsobenú snečným žiarením, druhá harmonická zložka opisuje vplyv dennej nestability, ktorá závisí od ročného obdobia.

Analýzou experimentálnych výsledkov, Garzon [9] určil správanie sa jednotlivých koeficientov v rovnici (1):

- $\phi_1$  je približne konštanta pre všetky mesiace
- $\phi_2$  sa mení od minimálnych hodnôt v zime po maximálne hodnoty v lete
- $A_1$  a  $A_2$  sa menia od minima v zime po maximum v lete

Ukázala sa dobrá korelácia medzi  $\phi_2$  a  $\Delta H$ , kde  $\Delta H$  je počet hodín, medzi východom a západom slnka a bola medzi nimi nájdená závislosť v tvare:  $\phi_2 = a + b\Delta H$ .

Keďže  $A_1$  a  $A_2$  dosahujú minimum v zime a maximum v lete, možno predpokladať, že závisia od solárneho toku. Toto bolo potvrdené pre koeficient  $A_1$  a overené na súbore dát z Ovieda. Pre  $A_2$  podobná závislosť nebola zistená.

#### 1.4.2 Sezónne variácie

Okrem denných variácií vykazuje objemová aktivita radónu aj sezónne variácie. Keďže sa objemová aktivita radónu meria na mnohých miestach vo svete, je možnosť porovnať sezónne variácie z rôznych častí sveta. Na základe týchto meraní organizácia

UNSCEAR vyvodila závery: "maximum koncentrácie sa ukazuje v jeseni a na začiatku zimy, minimum je na jar" [5]. S týmito závermi korešponujú výsledky merania ročných priebehov objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  počas rokov 1993 až 1998 na KJF FMFI UK Bratislava. Minimum aktivity nastáva v apríli, maximum v zimných mesiacoch najčastejšie v októbri až v decembri [31].

Cieľom S.Minata bolo vytvoriť jednoduchý a všeobecne platný model, ktorý umožňuje vypočítať priemernú mesačnú objemovú aktivitu  $^{222}\text{Rn}$  na základe mesačných meteorologických dát. S.Minato vychádza z jednodimenzionálnej rovnice pre mesačné stredné variácie v obvyklom tvare [8]:

$$\frac{\partial A_{Rn}}{\partial t} + U \frac{\partial A_{Rn}}{\partial l} = \frac{\partial}{\partial z} \left( K_c \frac{\partial A_{Rn}}{\partial z} \right) - \lambda_d A_{Rn} + S \quad (2)$$

kde

$A_{Rn}$  – objemová aktivita radónu

$t$  – čas

$U$  – horizontálna rýchlosť vetra

$l$  – vzdialenosť, na ktorú je radón transponovaný

$z$  – výška od povrchu zeme

$K_c$  - difúzny koeficient  $^{222}\text{Rn}$  v atmosfére

$\lambda_d$  -rozpadová konštanta  $^{222}\text{Rn}$

$S$  – výdatnosť radónového zdroja

Na základe meraní objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  v Nagoi boli ohodnotené veľkosti jednotlivých členov v rovnici (2) na zjednodušenie rovnice. Ďalej člen obsahujúci difúzny koeficient  $K_c$  bol nahradený členom charakterizujúcim zried'ovacie pomery v atmosfére. Potom stacionárne riešenie rovnice 2 má tvar [8]:

$$U \frac{\partial A_{Rn}}{\partial l} + (\lambda_d + \lambda_r) A_{Rn} = S \quad (3)$$

kde  $\lambda_r$  je parameter charakterizujúci vertikálnu výmenu vzduchu a možno ho vyjadriť v tvare:  $\lambda_r = aU$ , kde  $a$  je konštanta úmernosti.

Riešením diferenciálnej rovnice (3) dostaneme:

$$A_{Rn} = \frac{S}{\lambda_d + \lambda_r} \left[ 1 - \exp \left( - (\lambda_d + \lambda_r) \frac{L}{U} \right) \right] = \frac{fS}{\lambda_d + \lambda_r} \quad (4)$$

Pričom:

$$f = 1 - \exp \left[ - (\lambda_d + \lambda_r) \frac{L}{U} \right] \quad (5)$$

kde  $L$  je dĺžka dráhy radónu, ktorú prejde nad pevninou. Pre pobrežné oblasti S. Minato stanovil [8]:

$$A_{Rn} = \frac{fS}{\lambda_d + \lambda_r} \text{ ak fúka vietor z pevniny}$$

$$A_{Rn} = 0 \text{ ak fúka vietor od mora}$$

Všeobecne môžno zaviesť ďalšiu aproximáciu:

$$A_{Rn} = \frac{fSP}{\lambda_d + \lambda_r} \quad (6)$$

kde  $P$  – pomer dní kedy fúka vietor od pevniny k počtu všetkých dní v mesiaci. Výsledný teoretický model, ktorý S.Minato porovnáva s experimentálnymi výsledkami má potom tvar:

$$A_{Rn} = \frac{fSP}{\lambda_d + aU} \quad (7)$$

Napriek tomu, že tento model je iba približný, S.Minato udáva celkom dobrú zhodu medzi nameranými a vypočítanými hodnotami objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  [8].

## 1.5 Využitie $^{222}\text{Rn}$ pre štúdium atmosferických procesov

Štúdium atmosferických procesov v prízemnej vrstve atmosféry má význam z hľadiska modelovania distribúcie znečistenia v atmosfére. V tejto súvislosti sa ako významný stopovač transportu vzdušných mäs ukazuje  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$ . S ohľadom na uvedené skutočnosti, je dôležité poznať vzťah medzi objemovou aktivitou radónu, torónu a meteorologickými prvkami. Torón, pre svoj krátky polčas premeny umožňuje študovať atmosferické procesy v prvých metroch nad zemským povrchom, radón môže byť využitý na štúdium procesov, ktoré siahajú až do tropopauzy.

Pri popise atmosferických procesov a ich vzťahu k objemovej aktivite radónu a torónu sa uplatňuje niekoľko prístupov. Prvý prístup predstavuje určovanie vertikálnej distribúcie objemovej aktivity radónu (torónu) a na základe týchto meraní sa určuje koeficient turbulentnej difúzie. Koeficient turbulentnej difúzie sa určuje pomocou merania vertikálneho profilu teploty a rýchlosti vetra a je to parameter, ktorý popisuje stav atmosféry. Porovnanie teoretických a experimentálnych výsledkov určovania vertikálnej distribúcie objemovej aktivity radónu v troposfére naznačuje, že je možné určovať koeficient turbulentnej difúzie na základe merania radónu [10].

Druhý spôsob ako ohodnotiť vertikálnu stabilitu atmosféry je určovanie ekvivalentnej zmiešavacej výšky. Túto hodnotu možno určiť na základe merania objemovej aktivity radónu. Porovnanie s inými technikami ukazuje, že objemová aktivita radónu dobre indikuje výskyt atmosferickej stability.

Tretí prístup je hľadanie vzťahu medzi atmosférickou stabilitou a objemovou aktivitou radónu. Atmosferická stabilita je v tomto prípade charakterizovaná stupňom stability, ktorému je priradený súbor meteorologických prvkov. Pojem stupeň stability nevystihuje celkom presne definíciu, vhodnejšie by bolo hovoriť o difúzných koeficientoch, pretože pod pojmom stabilita sa rozumie iba stabilita statickej atmosféry, t.j. iba jej teplotné zvrstvenie.

### 1.5.1 Vertikálna distribúcia radónu

Koncentrácia  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$  v atmosfére v danej lokalite je funkciou exhalačnej rýchlosti radónu a torónu z pôdy, turbulentnej difúzie, horizontálnej rýchlosti vetra a rádioaktívneho rozpadu. Objemová aktivita rozpadových produktov je ovplyvňovaná aj sedimentáciou a vymývaním, pretože rozpadové produkty sa ihneď po vzniku viažu na aerosoly. Koncentráciu radionuklidu  $n_i$  v atmosfére môžeme popísať rovnicou [10]:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = \nabla (k \nabla n_i) - \bar{u} \nabla n_i + v_i \frac{\partial n_i}{\partial z} + \lambda_{i-1} n_{i-1} - (\lambda_i + \Lambda_i) n_i \quad (8)$$

kde:

$i$  – pozícia rádionuklidu v rozpadovom rade ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ :  $i=1$ )

$u_x, u_y, u_z$  – komponenty priemernej rýchlosti vetra  $\vec{u}$

$k$  – koeficient turbulentnej difúzie

$v_i$  – stredná rýchlosť sedimentácie

$\lambda_i$  – rozpadová konštanta nuklidu

$\Lambda_i$  – stredná rýchlosť vymývania nuklidu

Členy na pravej strane rovnice v poradí reprezentujú: turbulentné zmiešavanie, konvekciu, sedimentáciu, nárast nuklidu rozpadom materského nuklidu, rádioaktívny rozpad a vymývanie.

Pri riešení rovnice (8) môžeme vziať do úvahy nasledujúce predpoklady [10]:

1.  $\partial n_i / \partial x = \partial n_i / \partial y = 0$ , t.j. rovnomerná distribúcia objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$  v horizontálnom smere, čo je splnené v prípade, že priebeh koeficientu turbulentnej difúzie a exhalačná rýchlosť  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$  sú rovnaké v každom mieste.
2. Vertikálna rýchlosť vetra je malá v porovnaní s rýchlosťou vertikálnej distribúcie ( $u_z=0$ ).
3. Rýchlosť sedimentácie je menšia ako 1 m/h, t.j. je malá v porovnaní s rýchlosťou transportu spôsobeného turbulentným zmiešavaním ( $v_i = 0$ ).
4. Rýchlosť vymývania je nezávislá od výšky a rovnaká pre všetky rozpadové produkty ( $\Lambda_i = \text{konštanta} = \Lambda$ ). Pre  $^{222}\text{Rn}$  ju môžeme zanedbať, pretože  $\lambda_i \gg \Lambda_i$ .

Napriek tomu, že sú tieto štyri predpoklady často používané, nie sú univerzálne platné a je potrebné prehodnotiť ich efekt na konkrétne meranie [13].

Horizontálna homogenita radónového zdroja je všeobecne uvažovaná z dôvodu zjednodušenia konfigurácie zdroja. Taktiež treba prehodnotiť vplyv atmosferického tlaku, rýchlosti vetra a teplotný gradient pôdy na exhalačnú rýchlosť radónu [11].

Na základe predchádzajúcich úvah môžeme rovnicu (8) pre  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$  pri stabilných podmienkach prepísať do tvaru:

$$\frac{d}{dz} \left( k \frac{dn}{dz} \right) - \lambda n = 0 \quad (9)$$

Okrajové podmienky pre riešenie (9) sú dané:

$$\int_0^{\infty} \lambda n dz = E$$

$$\lim_{z \rightarrow \infty} n(z) = 0,$$

čo v praxi znamená, že obsah radónu v stĺpci vzduchu je daný exhalačnou rýchlosťou radónu alebo torónu z pôdy.

Numerický výpočet objemovej aktivity radónu z difúznej rovnice, vychádza z predpokladu, že môžeme atmosféru rozdeliť na tenké vrstvy, v ktorých je hodnota  $k$  konštantná. Potom môžeme rovnicu (9) prepísať do tvaru [13]:

$$k \frac{d^2 n(z)}{dz^2} - \lambda n(z) = 0 \quad (10)$$

Túto rovnicu riešime pre jednotlivé vrstvy a na rozhraní jednotlivých vrstiev musí platiť, že objemová aktivita radónu a toky objemovej aktivity radónu sa rovnajú.

Velmi dôležitým poznatkom je, že hrúbka jednotlivých vrstiev nemusí byť rovnaká. To znamená, že ak sa  $k(z)$  mení rýchlo s výškou, je hrúbka jednotlivých vrstiev menšia, tam kde sa  $k$  blíži ku konštante môžu byť vrstvy hrubšie.

Okrajovú podmienku  $n(z) \rightarrow 0$  ak  $z \rightarrow \infty$  je možné nahradiť okrajovou podmienkou, kde od určitej výšky  $h$  je  $k(z)$  konštantné. Keďže  $k(z)$  je konštantná od výšky  $h$  do nekonečna, objemová aktivita  $R_n$  musí s výškou exponenciálne klesať.

Na riešenie difúznej rovnice je dôležité poznať exhalačnú rýchlosť radónu z pôdy a koeficient turbulentnej difúzie.

Exhalačná rýchlosť radónu závisí od geologických parametrov, akými sú obsah radónu v pôde, difúzny koeficient, permeabilita a vlhkosť pôdy. A od meteorologických prvkov ako tlak, teplota a vlhkosť vzduchu [11].

Koeficient turbulentnej difúzie sa mení v závislosti od výšky v súlade s vertikálnym profilom rýchlosti vetra a atmosferickou stabilitou. Jeho hodnota je ovplyvnená konfiguráciou a pokrytím terénu a tiež hrúbkou hraničnej vrstvy, ktorá nie je konštantná, ale môže sa v čase meniť [15].

Charakteristické vzduchové vrstvy možno rozoznať z priebehu funkcie  $k(z)$ . Koeficient turbulentnej difúzie  $k$  narastá rýchlo s výškou v okrajovej vrstve pri zemskom povrchu. Vo vrchnej vrstve — troposfére  $dk/dz$  klesá a stáva sa takmer nezávislé od

výšky. Následkom vysokej stability stratosféry  $k$  opäť rýchlo klesá nad tropopauzou a približuje sa ku konštantnej hodnote v nižšej stratosfére [10].

Jacobi [10] uvádza niekoľko charakteristických priebehov  $k$  pre typické atmosférické podmienky v troposfére. Pre všetky prípady nastáva rýchly pokles koeficientu turbulentnej difúzie v tropopauze a jeho priblíženie ku konštantnej hodnote medzi 20 a 30 km.

Výpočty objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  robené na základe týchto vertikálnych profilov koeficientu turbulentnej difúzie ukazujú, že objemová aktivita  $^{222}\text{Rn}$  v hraničnej vrstve atmosféry výrazne závisí na zmiešavacej rýchlosti a mení sa rádovo 100 krát od minimálnej hodnoty počas silnej turbulencie po maximálnu hodnotu v prípade silnej inverzie. Rozsah zmien dobre korešponduje s experimentálnymi meraniami uskutočnenými v prízemnej vrstve atmosféry [10]. Taktiež sa ukazuje, že koeficient turbulentnej difúzie iba málo ovplyvňuje objemovú aktivitu vo výške od 0,5 do 2 km.

Na základe teoretických výsledkov možno predpokladať, že výraznú zmenu objemovej aktivity radónu možno očakávať iba v hraničnej vrstve atmosféry v prípade veľmi slabej turbulencie, čo je vlastne prípad silnej nočnej inverzie. Tieto závery môžu byť overené na základe meraní, ktoré uskutočnil H.Moses [14] v štáte Illinois pomocou meteorologického stožiaru, kde meral objemovú aktivitu radónu a meteorologické prvky v niekoľkých výškach až do výšky 39,9 m.

V máji a v júli boli merania uskutočnené počas slnečných dní a bezoblačných nocí. Silné prúdenie počas dňa spôsobilo rýchly prenos radónu do horných vrstiev. Následkom výrazného nočného ochladenia sa objavila vysoká stabilita atmosféry a vertikálne premiešavanie bolo potlačené. Vertikálny profil objemovej aktivity radónu zodpovedá teoreticky určenému profilu pre silnú inverziu. Počas augusta bolo ohrievanie a následné ochladzovanie atmosféry menšie a vertikálny profil objemovej aktivity radónu zodpovedá teoreticky určenému profilu pre prípad normálnej turbulencie [14].

### 1.5.2 Určovanie ekvivalentnej zmiešavacej výšky

Vertikálna difúzia, ktorá ovplyvňuje správanie sa exhalátov v prízemnej vrstve atmosféry, je ovplyvňovaná prítomnosťou inverznej vrstvy počas noci a hrúbkou zmiešavacej vrstvy počas dňa [16].

Inverzia v hraničnej vrstve atmosféry vzniká ako dôsledok nočného vyžarovania aktívneho povrchu. Radiačné ochladzovanie atmosféry počas noci spôsobuje zníženie teploty v najnižších vrstvách atmosféry čo vedie k stabilite atmosféry. Výsledkom je



potlačenie vertikálnej výmeny vzduchu v atmosfére. Rýchlosť vetra sa znižuje, čo má za následok zosilnenie inverzie. Okrem dĺžky noci sa vo vertikálnej mohutnosti a tepelnom gradiente inverznej vrstvy prejavuje konfigurácia terénu, geologické zloženie a charakter rastlinnej a snehovej pokrývky zemského povrchu. Nočná inverzia býva dobre vyvinutá za jasných bezoblačných nocí so stabilným vetrom alebo bezvetrím. V zime sa inverzia môže vytvárať aj počas dňa [17]. Následkom inverzie sa v spodnej vrstve atmosféry akumuluje radón.

Ranné ohrievanie zemského povrchu a následne spodnej vrstvy atmosféry narúša inverziu a spôsobuje premiešavanie atmosféry. Zväčšuje sa hrúbka zmiešavacej vrstvy a dochádza k poklesu objemovej aktivity radónu. V zmiešavacej vrstve sa exhalované prímiesy môžu rozptýľovať v celom rozsahu, zhora je vertikálna výmena obmedzená zadržujúcou teplotnou vrstvou. Teplotný gradient vnútri zmiešavacej vrstvy odpovedá instabilnému, indiferentnému alebo mierne stabilnému teplotnému zvrstveniu. Hrúbka zmiešavacej vrstvy sa nazýva zmiešavacia výška [17].

Oblačnosť alebo dážď počas dňa má za následok, že sa nočná stabilná vrstva nevytvorí a akumulácia radónu v prízemnej vrstve nie je taká výrazná [18].

Parametrom, ktorý umožňuje ohodnotenie vertikálnej stability atmosféry s využitím kontinuálneho merania radónu v prízemnej vrstve atmosféry je "ekvivalentná zmiešavacia výška  $h_e$ " [16].

Model navrhnutý Fontanom [16], pre ekvivalentnú zmiešavaciu výšku vychádza z predstavy hromadenia  $^{222}\text{Rn}$  v akumuláčnej nádobe a umožňuje určiť výšku tejto nádoby. Táto metóda využíva na ohodnotenie ekvivalentnej zmiešavacej výšky  $h_e$  kontinuálne meranie objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  v prízemnej vrstve atmosféry. Pritom predpokladáme, že:

- exhalačná rýchlosť  $E$  je konštantná počas celej doby akumulácie  $^{222}\text{Rn}$
- variácie objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  sú spojené len s vertikálnou stabilitou atmosféry

Pre výpočet  $h_e$  sa využíva obdobie, kedy je  $^{222}\text{Rn}$  akumulovaný v prízemnej vrstve atmosféry, t.j. od popoludňajších hodín až do skorých ranných hodín nasledujúceho dňa, kedy východ slnka preruší nárast aktivity. Ekvivalentnú zmiešavaciu výšku  $h_e$  možno potom určiť zo vzťahu [16]:

$$h_e(t) = E \frac{\Delta t}{A(t) - A_0} \quad (11)$$

kde:

$A(t)$  - je objemová aktivita  $^{222}\text{Rn}$  v čase  $t$

$A_0$  - je objemová aktivita  $^{222}\text{Rn}$  na začiatku kumulovania

$E$  - exhalačná rýchlosť  $^{222}\text{Rn}$  z pôdy

$\Delta t$  - čas, ktorý uplynul od začiatku hromadenia  $^{222}\text{Rn}$  po dosiahnutie objemovej aktivity v čase  $t$

Ekvivalentnú zmiešavaciu výšku nie je možné stotožňovať s hrúbkou stabilnej vrstvy v atmosfére v nočných hodinách. Je to parameter intenzity vertikálneho zmiešavania: výška, ktorú dosahuje radón exhalovaný z podlažia.

Ekvivalentnú zmiešavaciu výšku  $h_e$  možno dať do súvisu s intenzitou vertikálnej difúzie cez nočnú stabilnú vrstvu. Parametrom kvalifikujúcim vertikálnu difúziu je ekvivalentný výmenný koeficient  $K_e$ . Vzťah medzi  $K_e$  a  $h_e$  je vyjadrený rovnicou [7]:

$$h_e^2 \approx 0,8K_e t \quad (12)$$

$K_e$  je parameter, pomocou ktorého je možné ohodnotiť napríklad disperziu znečisťujúcich prímiesí počas noci.

### 1.5.3 Klasifikácia atmosferickej stability

V meteorológii sa stupeň atmosferickej stability určuje pomocou súboru meteorologických parametrov, ktoré ovplyvňujú správanie sa exhalátov v atmosfére. Toto pomenovanie nie je celkom presné, pretože sa pod ním rozumie stabilita statickej atmosféry, ktorá je popísaná teplotnými gradientami. V súčasnej dobe sú používajú najmä nasledujúce metódy:

- Pasquillova metóda
- Turnerova metóda
- ich modifikácie

Tieto metódy udávajú iba približnú informáciu o atmosferickej stabilite. Priame meranie atmosferickej stability je zložité a finančne náročné.

Klasifikácie atmosferickej stability vychádzajú predovšetkým z nasledujúcich meteorologických prvkov:

- slnečného žiarenia

- rýchlosti vetra
- oblačnosti

Toto sú tie isté prvky, ktoré tiež ovplyvňujú správanie sa objemovej aktivity radónu vo vonkajšej atmosfére.

Pasquillova metóda rozoznáva šesť stupňov stability [12]:

A – extrémne nestabilné zvrstvenie

B – stredne nestabilné zvrstvenie

C – mierne nestabilné zvrstvenie

D – neutrálne zvrstvenie

E – slabo stabilné zvrstvenie

F – mierne stabilné zvrstvenie

Počas dňa určuje zaradenie stavu atmosféry do niektorej z kategórií insolácia a rýchlosť vetra. V noci je to pokrytie oblohy oblakmi a rýchlosť vetra.

Pasquill uvažoval insoláciu iba kvalitatívne a neriešil prípad zamračenej oblohy vo dne i v noci. Takisto neuvažoval prípad slabého vetra v noci za jasného počasia. Uvádza iba, že pre tento prípad je difúzia menšia ako F.

Značnú modifikáciu Pasquillovej metódy previedol Reuter. Predovšetkým číselne ohodnotil insoláciu:

silná insolácia	> 524 J/m <sup>2</sup> s
mierna insolácia	280 - 524 J/m <sup>2</sup> s
slabá insolácia	< 280 J/m <sup>2</sup> s

Ďalej vynechal kategóriu A a každej dvojici prvkov rýchlosť vetra – insolácia priradil jednoznačne odpovedajúcu kategóriu.

Kategórie stability atmosféry podľa Pasquilla modifikované Reuterom:

rýchlosť vetra [m/s ]	insolácia vo dne			oblačnosť v noci	
	silná	mierna	slabá	0/8–3/8	4/8–8/8
0 – 1,5	B	B	C	F	F
1,6 – 2,5	B	C	C	E	E
2,6 – 3,5	C	C	C	E	D
3,6 – 5,5	C	C	D	D	D
> 5,5	C	D	D	D	D

Turnerova klasifikácia stability modifikovaná Neslerom a Reuterom rozoznáva sedem stupňov stability atmosféry [12]:

- 1 – extrémne nestabilná
- 2 – nestabilná
- 3 – mierne nestabilná
- 4 – neutrálna
- 5 – mierne stabilná
- 6 – stabilná
- 7 – extrémne stabilná

Množstvo žiarenia, ktoré má vplyv na stabilitu, je reprezentované výškou Slnka nad horizontom. Výšku Slnka sa vypočíta podľa vzťahu:

$$\sin\alpha = \sin\varphi \cdot \sin\delta + \cos\varphi \cdot \cos\delta \cdot \cos(15t) \quad (13)$$

kde  $\alpha$  je výška Slnka,  $\varphi$  – zemepisná šírka daného miesta,  $\delta$  – deklinácia Slnka,  $t$  – časový uhol Slnka (pravý miestny čas).

Na základe výšky Slnka možno index ožiarenia zemského povrchu určiť podľa nasledujúcej tabuľky:

Výška slnka [ $^{\circ}$ ]	Index ožiarenia
$50 < \alpha$	4
$30 < \alpha \leq 50$	3
$15 < \alpha \leq 30$	2
$7 < \alpha \leq 15$	1
$\alpha \leq 7$	0

Turner ďalej uvažoval stupeň pokrytia oblohy oblakmi a výšku oblakov. Na základe oblačnosti určil opravný faktor  $\Delta I$ :

Nakoniec získame na základe indexov ožiarenia, stupňa oblačnosti a rýchlosti vetra výsledný stupeň stability z nasledujúcej tabuľky:

Z tabuľky môžeme vidieť:

- nestabilita sa vyskytuje: pri vysokej kladnej hodnote indexu ožiarenia, pri nízkej rýchlosti vetra
- stabilita sa vyskytuje: pri vysokej zápornej hodnote indexu ožiarenia a strednej rýchlosti vetra
- neutrálne podmienky nastávajú: pri oblačnosti alebo pri vysokej rýchlosti vetra

Oblačnosť		$\Delta I$
v noci:	N=8/8 (zatiehnutá obloha)	0
	4/8 N 7/8	-1
	0 N 3/8	-2
	hmla	-1
cez deň:	N 4/8	0
	4/8 N 7/8	-1
	N = 8/8 a N <sub>h</sub> 7/8	-2
	hmla	0

Rýchlosť vetra [m/s ]	Upravený index ožiarenia						
	4	3	2	1	0	-1	-2
≤ 1,0	1	1	2	3	4	6	7
1,1 - 1,5	1	2	2	3	4	6	7
1,6 - 2,5	1	2	3	4	4	5	6
2,6 - 3,0	2	2	3	4	4	5	6
3,1 - 3,5	2	2	3	4	4	4	5
3,6 - 4,5	2	3	3	4	4	4	5
4,6 - 5,0	3	3	3	4	4	4	5
5,1 - 5,5	3	3	4	4	4	4	4
≥ 5,6	3	4	4	4	4	4	4

## 1.6 <sup>14</sup>C v prírodných médiách

Prírodný <sup>14</sup>C vzniká v horných vrstvách atmosféry ako výsledok interakcie častíc kozmického žiarenia s atómami dusíka a kyslíka.

Najväčší príspevok k produkcii <sup>14</sup>C dáva reakcia <sup>14</sup>N(n,p)<sup>14</sup>C. Z celkového počtu neutrónov vytvorených v atmosfére kozmickým žiarením sa 60% zachytí a vytvorí <sup>14</sup>C, 25% sa zachytí v druhých reakciách a 15% unikne z atmosféry. Produkcia <sup>14</sup>C sa odhaduje na  $2,4 \cdot 10^4$  atómov.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, čo predstavuje rovnovážnu koncentráciu  $3 \cdot 10^{28}$  atómov <sup>14</sup>C v atmosfére Zeme [19].

Antropogénnymi zdrojmi <sup>14</sup>C v atmosfére sú jadrové skúšky a prevádzka jadrových zariadení. Jadrové skúšky uskutočnené v rokoch 1961–62 v atmosfére spôsobili nárast koncentrácie <sup>14</sup>C o 100% oproti prírodnej hodnote. V súčasnej dobe je prevýšenie koncentrácie <sup>14</sup>C v atmosfére približne 10% nad prírodnou úrovňou.

Koncentrácia <sup>14</sup>C sa udáva ako relatívne prevýšenie koncentrácie <sup>14</sup>C nad prírodnú

hodnotu opravenú na izotopické zloženie C:

$$\Delta^{14}C = \delta^{14}C - (2\delta^{13}C + 50) \left(1 + \frac{\delta^{14}C}{1000}\right) \text{‰} \quad (14)$$

$$\delta^{14}C = \frac{A - A_{STD}}{A_{STD}} \times 1000 \text{‰} \quad (15)$$

kde  $A$  je aktivita vzorky a  $A_{STD}$  je 95% aktivity rádiouhlíkového štandardu. Hodnota  $\delta^{13}C$  sa určuje pomocou hmotnostnej spektrometrie a udáva izotopický pomer  $^{13}C/^{12}C$ . Určuje sa relatívne k PDB štandardu.

Uhlík sa v atmosfére viaže s kyslíkom a vytvára  $CO_2$ , ktoré sa potom rôznymi cestami dostáva do všetkých zložiek životného prostredia.

### 1.6.1 $CO_2$ v prízemnej vrstve atmosféry

Denné variácie  $CO_2$  vo vonkajšej atmosfére sú ovplyvnené predovšetkým stabilitou atmosféry, exhaláciou pôdneho  $CO_2$ , fotosyntézou a respiráciou rastlín.

V letných mesiacoch sa objavuje výraznejšia denná vlna, s najvyššou koncentráciou počas noci, kedy je potlačené vertikálne premiešavanie prízemnej vrstvy atmosféry a respirácia rastlín závisí od fotosyntézy v predchádzajúcich hodinách. Po východe slnka, koncentrácia  $CO_2$  klesá následkom vertikálneho premiešavania v prízemnej vrstve atmosféry a fotosyntézy rastlín. Zvyčajne sa najnižšia koncentrácia  $CO_2$  počas dňa objaví v prípade slnečného, bezveterného dňa [20]. Zimné mesiace sa vyznačujú nevýraznou variáciou dennej vlny, čo je spôsobené tým, že v zimných mesiacoch nedochádza počas dňa k výraznému premiešavaniu v prízemnej vrstve atmosféry a taktiež je oslabená fotosyntéza rastlín.

Sezónne variácie koncentrácia  $CO_2$  vykazujú letné minimum, ktoré je obyčajne v júli a zimné maximum [20, 21].

Pri určovaní exhalácie pôdneho  $CO_2$  do vonkajšej atmosféry je dôležité odhadnúť vplyv rastlinnej pokrývky na celkový tok  $CO_2$  do vonkajšej atmosféry. Jedna z metód ako spoľahlivo určiť exhalácie pôdneho  $CO_2$ , je súčasné meranie hĺbkových profilov  $CO_2$ ,  $^{222}Rn$  v pôdnom vzduchu a exhalačnej rýchlosti  $^{222}Rn$  z pôdy. Ukazuje sa, že takéto meranie dáva vierohodnejšie výsledky o exhalácii  $CO_2$  z pôdy ako priame merania exhalácie  $CO_2$ . Výnimkou sú pôdy bez rastlinnej pokrývky, kde priame meranie exhalačnej rýchlosti  $CO_2$  z pôdy vykazuje veľmi dobrú zhodu s meraniami exhalačnej rýchlosti pomocou pôdnych profilov [23].

Ako už bolo spomenuté, exhalačná rýchlosť radónu závisí od geologických parametrov

a meteorologických prvkov náhodného charakteru [11]. Radón je v pôde rovnomerne produkovaný, takže závislosť objemovej aktivity radónu od hĺbky  $z$  má tvar [25]:

$$A_{Rn}(z) = \frac{K_e A_{v,Ra}}{F_p - w} (1 - \exp(-z/L)) \quad (16)$$

kde  $A_{v,Ra}$  je objemová aktivita rádia v pôde,  $K_e$  je emanačný koeficient  $^{222}\text{Rn}$ ,  $F_p$  je porozita pôdy,  $w$  je vlhkosť pôdy a  $L = \sqrt{(D_{ef}/\lambda_{Rn})}$  je difúzna dĺžka  $^{222}\text{Rn}$  v pôde,  $D_{ef}$  je efektívny difúzny koeficient. Pre  $z \gg L$  objemová aktivita radónu dosahuje nasýtenú hodnotu a rovnica (16) prejde do tvaru:

$$A_{S,Rn}(z) = \frac{K_e A_{v,Ra}}{F_p - w} \quad (17)$$

Nakoniec pre exhalačnú rýchlosť  $^{222}\text{Rn}$  z pôdy dostaneme:

$$E_{S,Rn} = -\lambda_{Rn} K_e A_{v,Ra} L \quad (18)$$

$\text{CO}_2$  v pôdnom vzduchu je produkované koreňovou respiráciou a mikrobiologickou dekompozíciou organickej hmoty. Nárast koncentrácie  $\text{CO}_2$  s hĺbkou je určený hĺbkovou distribúciou organickej hmoty. Koncentrácia  $\text{CO}_2$  závisí od veľkosti zdroja a štruktúry pôdy

a jej závislosť od hĺbky  $z$  možno popísať vzt'ahom [25]:

$$C_{CO_2}(z) = C_{0,CO_2} (1 - \exp(-z/z_{CO_2})) + C_{atm} \quad (19)$$

kde  $C_{atm}$  je koncentrácia  $\text{CO}_2$  na povrchu pôdy,  $z_{CO_2}$  je difúzna dĺžka a  $C_{0,CO_2}$  vyjadruje rozdiel medzi hodnotou koncentrácie  $\text{CO}_2$  v hĺbke  $z \gg z_{CO_2}$  a koncentráciou  $\text{CO}_2$  v atmosfére.

Pre exhalačnú rýchlosť  $\text{CO}_2$  z pôdy vychádzajúc z Fickovho zákona platí:

$$j_{0,CO_2} = -\frac{(F_p - w) D_{ef,CO_2} C_{0,CO_2}}{z_{CO_2}} \quad (20)$$

Pomer exhalačných rýchlostí  $\text{CO}_2/^{222}\text{Rn}$  vyjadruje vzt'ah:

$$\frac{j_{0,CO_2}}{E_{S,Rn}} = \frac{D_{ef,CO_2} C_{0,CO_2} L}{D_{ef,Rn} A_{S,Rn} z_{CO_2}} \quad (21)$$

Pomer efektívnych difúzných koeficientov  $D_{ef,CO_2}/D_{ef,Rn}$  pri teplote  $15^\circ\text{C}$  je 1,3 a

pomer exhalačných rýchlostí  $\text{CO}_2/^{222}\text{Rn}$  nezávisí od parametrov pôdy [22].

Na základe predchádzajúcich úvah, možno z priebehu hĺbkového profilu určiť exhalačnú rýchlosť  $\text{CO}_2$ , ktorá nie je ovplyvnená rastlinnou pokrývkou povrchu. Produkcia  $\text{CO}_2$  závisí od rastlinnej aktivity, ktorá je ovplyvnená teplotou, takže exhalačná rýchlosť  $\text{CO}_2$  z pôdy závisí lineárne od teploty. Merania, ktoré uskutočnili Dörr a Münnich [26], vykazujú vysokú koreláciu medzi teplotou a exhalačnou rýchlosťou  $\text{CO}_2$  z pôdy. Táto korelácia nezávisí od typu pôdy alebo rastlinnej pokrývky. Typ pôdy a rastlinnej pokrývky ovplyvňuje iba závislosť exhalácie  $\text{CO}_2$  od atmosferických zrážok. Vlhkosť pieskových pôd iba v malej miere ovplyvňujú zrážky. U ílových pôd sa naopak zvýšené množstvo zrážok dlho prejavuje na obsahu vlhkosti v pôde [26].

Druhý spôsob, ako určiť exhaláciu pôdneho  $\text{CO}_2$  do vonkajšej atmosféry je na základe meraní exhalačnej rýchlosti  $^{222}\text{Rn}$  z pôdy a súčasne meraní objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  a koncentrácie  $\text{CO}_2$  vo vonkajšej atmosfére. Tento spôsob vychádza z predpokladu, že pomer koncentrácie  $\text{CO}_2$  a objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  vo vonkajšej atmosfére je rovnaký ako pomer ich exhalačných rýchlostí z pôdy [27].

Aj v tomto prípade je možné uhodnotiť vplyv fotosyntézy rastlín na pokles koncentrácie  $\text{CO}_2$  v prízemnej vrstve atmosféry počas dňa. Môžeme predpokladať, že exhalácia z pôdy a respirácia rastlín ostáva počas dňa aj počas noci rovnaká a počas dňa sa na koncentracii  $\text{CO}_2$  v prízemnej vrstve atmosféry prejaví vplyv fotosyntézy. Takže sa dá predpokladať, že večerný nárast koncentrácie  $\text{CO}_2$  a objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  bude v inom pomere ako ranný pokles koncentrácie  $\text{CO}_2$  a objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$ . Merania, ktoré uskutočnili Dörr a Münnich [27] ukazujú iba malý rozdiel týchto pomerov. Z toho možno vyvodiť záver, že koncentrácia  $\text{CO}_2$  v prízemnej vrstve atmosféry je výsledkom atmosferickej stability a nie fotosyntézy rastlín.

### 1.6.2 $^{14}\text{CO}_2$ v prízemnej vrstve atmosféry

Koncentrácie  $^{14}\text{CO}_2$  v prízemnej vrstve atmosféry sú výsledkom pôsobenia časovo sa meniacich faktorov, ako je transport vzdušných mäs zo stratosféry do troposféry, emisia  $\text{CO}_2$  zo spaľovania fosílnych palív s nulovým obsahom  $^{14}\text{C}$ , exhalácia biogénneho  $\text{CO}_2$  z pôdy do atmosféry, fotosyntéza rastlín a atmosferické rozptylové podmienky.

Dlhodobé trendy hodnôt  $\Delta^{14}\text{C}$  vo vonkajšej atmosfére pre Európsky kontinent sú merané v Nemecku na stanici Jungfraujoch a Schaanisland [21]. Tieto hodnoty sú odvodené z dlhodobých meraní koncentrácií  $^{14}\text{C}$  v atmosfére. Údaje merané na týchto



staniciach sa selektujú na základe dlhodobých meraní rýchlosti vetra. Do spracovania sa berú iba údaje, ktoré boli namerané v prípade rýchlosti vetra väčšej ako je dlhodobý priemer pre danú stanicu a sezónu (leto/zima). Tieto data predstavujú tzv. Európsky čistý vzduch, ktorý predstavuje pozad'ovú hodnotu  $^{14}\text{C}$  v atmosfére.

Po zákaze jadrových skúšok v atmosfére má hodnota  $\Delta^{14}\text{C}$  klesajúci charakter s časovou konštantou približne 16 rokov. Tento trend ovplyvňuje výmena medzi jednotlivými rezervoármi a prísun  $\text{CO}_2$  s nulovým obsahom  $^{14}\text{C}$  do vonkajšej atmosféry následkom spaľovania fosílnych palív.

Aby sme mohli správne interpretovať namerané údaje o ročnom priebehu  $\text{CO}_2$ , treba správne ohodnotiť príspevok od jednotlivých zložiek.

Napriek tomu, že koncentrácia  $\text{CO}_2$  v prízemnej vrstve atmosféry je vo výraznej miere ovplyvňovaná exhaláciou pôdneho  $\text{CO}_2$ , hodnota  $\Delta^{14}\text{C}$  v atmosfére je iba v malej miere ovplyvňovaná hodnotou  $\Delta^{14}\text{C}$  v pôde [28]. Hodnota  $\Delta^{14}\text{C}$  v pôdnom  $\text{CO}_2$  sa v letnom období blíži k atmosferickej hodnote  $\Delta^{14}\text{C}$ . Zimné obdobie sa vyznačuje znížením hodnoty  $\Delta^{14}\text{C}$  následkom zníženia biogénnej aktivity [26]. Exhaláciu pôdneho  $\text{CO}_2$  možno rozdeliť na dve zložky, rýchlu a pomalú. Rýchlu zložku tvorí okamžitý rozklad organickej hmoty a koreňové dýchanie, pomalú zložku tvorí dlhšie sa rozkladajúca organická hmota. V letnom období je  $\text{CO}_2$  produkované predovšetkým rýchlou zložkou a preto je hodnota  $\Delta^{14}\text{C}$  blízka atmosferickej hodnote  $\Delta^{14}\text{C}$ . V zimnom období prispieva ku koncentrácii  $\text{CO}_2$  hlavne pomalá zložka, ktorá sa vyznačuje nižšou koncentráciou  $^{14}\text{C}$ . V ročnom priemere exhalovaného  $\text{CO}_2$  tvorí príspevok rýchlej zložky približne 40% a príspevok pomalej zložky približne 60%.

Znižovanie hodnoty  $\Delta^{14}\text{C}$  vo vonkajšej atmosfére v zimnom období je spôsobené prísunom fosílného  $\text{CO}_2$  s nulovým obsahom  $^{14}\text{C}$ . V lete naopak  $\Delta^{14}\text{C}$  vykazuje vyššie hodnoty, aj v dôsledku výraznejšieho vertikálneho premiešavania prízemnej vrstvy atmosféry [21].

Ak chceme správne ohodnotiť prísun fosílného  $\text{CO}_2$  do vonkajšej atmosféry je dôležité poznať stupeň stability atmosféry. To nám umožní určiť mieru premiešania jednotlivých atmosferických vrstiev a následne príspevok jednotlivých rezervoárov  $\text{CO}_2$ . Ak poznáme vzťah atmosferickej stability k objemovej aktivite radónu v prízemnej vrstve atmosféry, môžeme mieru premiešania jednotlivých atmosferických vrstiev určiť na základe merania radónu v prízemnej vrstve atmosféry.

Odhad fosílny zložky  $\text{CO}_2$  v atmosfére, ktorý uvádza vo svojej práci Levin [21], vychádza opäť z prepokladu, že pomer koncentrácie fosílného  $\text{CO}_2$  v prízemnej vrstve atmosféry k objemovej aktivite  $^{222}\text{Rn}$ , je v rovnakom pomere ako exhalačné rýchlosti

fosílného CO<sub>2</sub> a pôdneho <sup>222</sup>Rn. Pritom vychádza z predpokladu, rovnomerného rozloženia exhalácie <sup>222</sup>Rn z pôdy do prízemnej vrstvy atmosféry a približne rovnomerného rozloženia zdroja fosílného CO<sub>2</sub>. Na základe meraní objemovej aktivity <sup>222</sup>Rn vo vonkajšej atmosfére ( $c_{Rn}$ ) a exhalačných rýchlostí <sup>222</sup>Rn z pôdy ( $j_{Rn}$ ), môžeme určiť exhaláciu fosílného CO<sub>2</sub> zo vzťahu:

$$j_{fos} = j_{Rn} \times \frac{c_{fos}}{c_{Rn}} \quad (22)$$

$c_{fos}$  predstavuje fosílnu zložku CO<sub>2</sub> v atmosfére, ktorú je možné určiť na základe merania  $\Delta^{14}\text{C}$  v atmosferickom CO<sub>2</sub> a merania pozad'ovej hodnoty  $\Delta^{14}\text{C}$  v atmosfére (Európsky čistý vzduch) [21].

## 2 Projekt dizertačnej práce

### 2.1 Ciele dizertačnej práce

Ciele dizertačnej práce sú stanovené v súlade s potrebami riešenia úloh radónovej problematiky na Katedre jadrovej fyziky FMFI UK v Bratislave.

Hlavnými cieľmi práce sú:

1. Analýza denných a sezónnych variácií objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  vo vonkajšej atmosfére a ich popis na základe jednodimenzionálnych modelov.
2. Štúdium vzťahu objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  k atmosferickej stabilite a ďalším charakteristikám prízemnej vrstvy atmosféry.
3. Získanie údajov o exhalačnej rýchlosti  $^{222}\text{Rn}$  z pôdy ako dôležitého parametra pri modelovaní variácií radónu a jeho aplikačného využitia.
4. Analýza  $\Delta^{14}\text{C}$  dát vo vonkajšej atmosfére a v pôdnom vzduchu.
5. Štúdium využitia  $\Delta^{14}\text{C}$  a  $^{222}\text{Rn}$  dát pre určovanie emisií fosílného  $\text{CO}_2$  do atmosféry.

## 2.2 Dosiahnuté výsledky, návrhy riešenia úloh

Kontinuálne meranie objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  v prízemnej vrstve atmosféry sa uskutočňuje v areáli KJF FMFI UK vo výške 1,5 m nad zemou od roku 1991. Na tento účel sa používa veľkoobjemová scintilačná komora v tvare valca s vnútorným priemerom 120mm a dĺžkou 400mm. Vnútorný objem komory je 4,5 l. Na dosiahnutie lepšej účinnosti merania je priestor komory rozdelený na 9 sektorov. Vnútorné steny sú pokryté vrstvou ZnS(Ag), ktorá slúži ako scintilátor. Komora je na obidvoch koncoch zakončená sklenenými okienkami. Na každom konci valca je umiestnený fotonásobič. Obe polovice pracujú ako nezávislé detektory a výsledný signál sa sumuje.

Súčasťou meracieho zariadenia je odberová trasa. Z odberového miesta prechádza vzduch cez hadicu do vymrazovačky a kolónky so silikagelom. Tieto slúžia na zachytávanie vodných pár, ktoré by mohli poškodiť scintilátor. Tesne pred vstupom do komory prechádza vzduch cez membránový filter, ktorý ho zbaví aerosolových častí. Prietok je potrebné zvoliť tak, aby počas odberovej trasy došlo k celkovému rozpadu  $^{220}\text{Rn}$  a do scintilačnej komory vchádzal vzduch, ktorý obsahuje iba  $^{222}\text{Rn}$  [29, 30, 31]. Citlivosť komory je 0,3 imp/min na  $1 \text{ Bq/m}^3$  aktivity  $^{222}\text{Rn}$ . Pozadie je 2,4 imp/min.

Komora je okalibrovaná podľa Wardovej kalibračnej metódy, ktorá je podrobne rozpracovaná v práci [32].

Od roku 1996 sa na meranie objemovej aktivity radónu používa aj ionizačná komora firmy Genitron [33]. Tento detektor je vhodný na meranie objemovej aktivity radónu a torónu v atmosfére, pôde, vode, stavebných materiáloch. Taktiež ním možno merať rozpadové produkty radónu. Zároveň meria aj teplotu, tlak a vlhkosť vzduchu.

Aktívny objemom ionizačnej komory je 0.56 l. Do objemu komory vchádza vzduch, cez filter zo sklenených vlákien, pasívnou difúziou. Prvotný signál je nepretržite zberaný v krátkych časových intervaloch, a celý tvar signálu je reprezentovaný sériou hodnôt. Tieto sú ďalej spracovávané tromi separátnymi kanálmi. Spektroskopický kanál poskytuje informáciu o veľkosti amplitúdy signálu, o počte výskytov počas jednotky času a o tvare impulzu. Táto 3D-informácia v konečnom dôsledku umožňuje vytriediť nevhodné signály zo spektra. Druhý kanál je používaný iba pri väčších aktivitách. A nakoniec tretí kanál pokrýva extrémne vysoké aktivity [33]. Citlivosť ionizačnej komory je 0,05 imp/min na  $1 \text{ Bq/m}^3$  aktivity  $^{222}\text{Rn}$ . Pozadie je menšie ako  $1 \text{ Bq/m}^3$ .

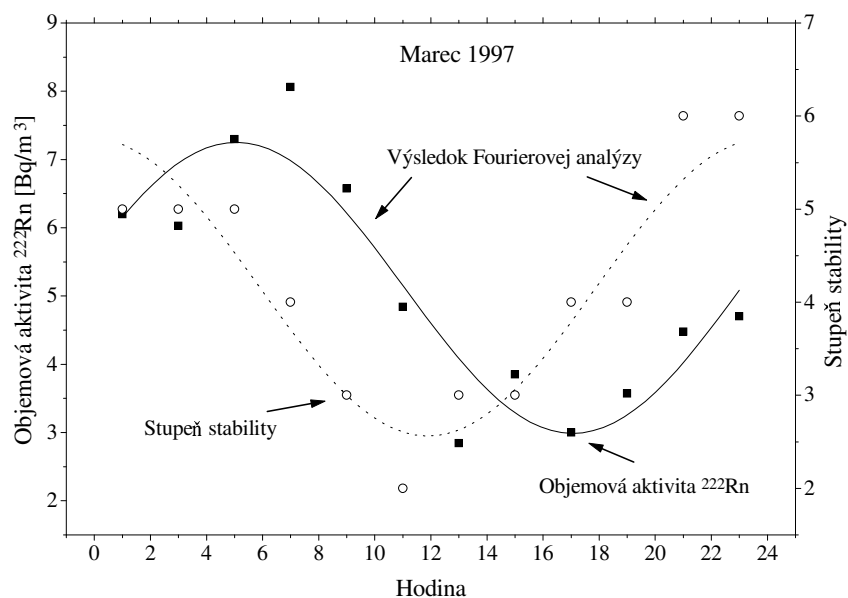
Meteorologické prvky vo vonkajšej atmosfére sú merané na Katedre meteorológie a klimatológie FMFI UK.

Na základe meraní objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  a meteorologických prvkov v prízemnej vrstve atmosféry vznikol v predchádzajúcich rokoch rozsiahly katalóg dát, ktorý mapuje obdobie rokov 1993 až 1998. Na týchto dátach boli overené niektoré jednoduché modely popisujúce denné a sezónne variácie radónu v prízemnej vrstve atmosféry. Pribežne je tento katalóg dopĺňaný o ďalšie namerané obdobia.

Štúdium vzťahu objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  k atmosferickej stabilite nadviaže na predchádzajúce výsledky, ktoré analyzujú dáta z roku 1997 na základe Turnerovej klasifikácie stability atmosféry (modifikovanej Reuterom).

Na obrázkoch 1 a 2 je priebeh objemových aktivít radónu a stupňa stability v prízemnej vrstve atmosféry v mesiacoch marec a august 1997. Objemová aktivita radónu, tak ako aj stabilita atmosféry vykazuje najnižšiu hodnotu v popoludňajších hodinách. Medzi stupňom stability a objemovou aktivitou radónu je približne dvojhodinový posun v auguste, v marci je tento posun výraznejší. Tento jav zrejme súvisí s pomalšou odozvou objemovej aktivity radónu na zmenu atmosferickej stability a je potrebné podrobnejšie ho analyzovať.

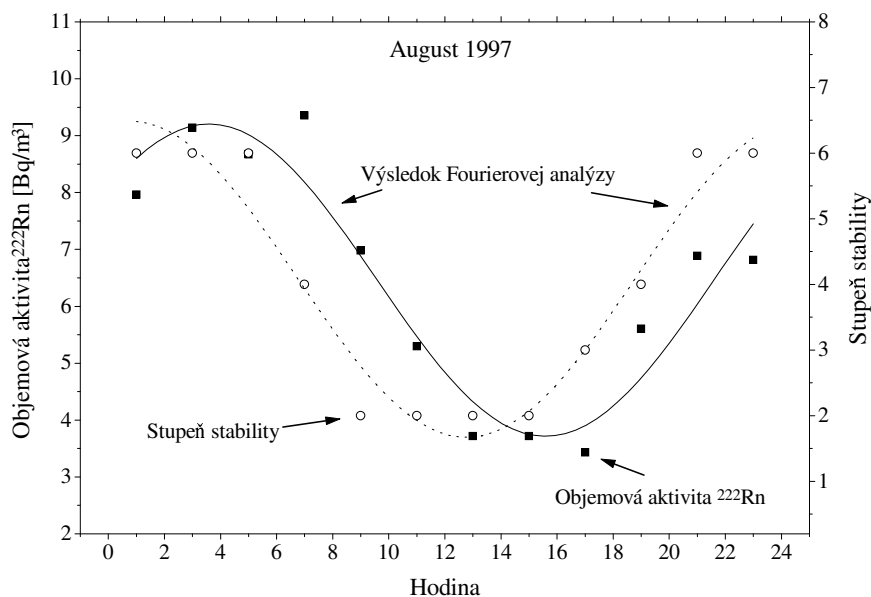
Ďalšie analýzy ohľadom vzťahu objemovej aktivity radónu vo vonkajšej atmosfére atmosferickej stabilite budú zamerané na porovnanie so stupňami stability, ktoré udáva



Obrázok 1: Priemerný denný priebeh objemovej aktivity radónu a stupňa stability vo vonkajšej atmosfére v marci 1997

Pasquill (modifikované Reuterom).

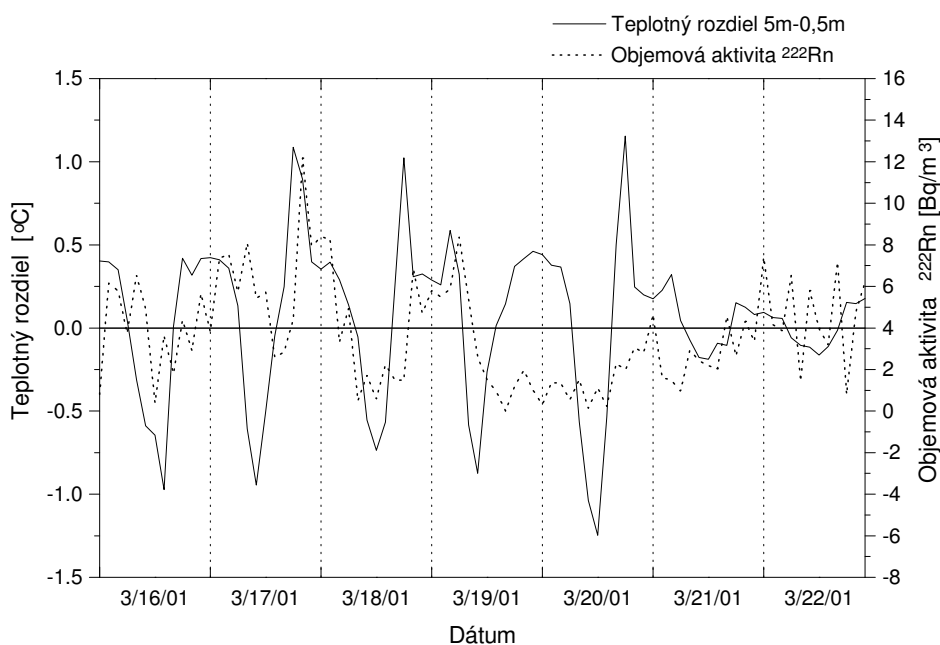
V neposlednej rade, je potrebné analyzovať metódu určovania ekvivalentnej zmiešavacej výšky, ako ďalšieho parametra charakterizujúceho prízemnú vrstvu atmosféry. Tieto analýzy je potrebné porovnať, tak s výsledkami merania objemovej aktivity radónu v prízemnej vrstve atmosféry, ako aj so stupňami stability atmosféry.



Obrázok 2: Priemerný denný priebeh objemovej aktivity radónu a stupňa stability vo vonkajšej atmosfére v auguste 1997

Ďalším meraním, pomocou ktorého je možné ohodnocovať stabilitu atmosféry je meranie vertikálneho gradientu teploty. Toto meranie je v súčasnosti v prípravnej fáze a prvé výsledky možno vidieť na obrázku 3. Rozdiel teplôt meraných vo výške 5 m a 0,5 m nad zemským povrchom je porovnávaný so simultánnymi meraniami objemovej aktivity radónu vo výške 1,5 m nad zemským povrchom. Kladný rozdiel teplôt predstavuje vyššiu teplotu vo výške 5 m ako vo výške 0,5 m, čo indikuje stabilné zvrstvenie atmosféry. Záporný rozdiel naopak ukazuje na instabilné zvrstvenie atmosféry, v dôsledku čoho dochádza k premiešaniu jednotlivých vrstiev atmosféry. V období od 16.3. až do ranných hodín 19.3. môžeme vidieť pravidelný priebeh gradientu teplôt a objemovej aktivity radónu. Stabilné zvrstvenie atmosféry spôsobuje nárast objemovej aktivity radónu v nočných hodinách. V ranných hodinách, keď sa poruší inverzia, nastáva pokles objemovej aktivity radónu v súlade s poklesom tepelného gra-

dientu. Takisto na týchto meraniach môžeme pozorovať posun medzi objemovou aktivitou radónu a teplotným gradientom. Toto obdobie sa vyznačovalo teplým, prevažne slnečným počasím. Po 19.3. nastáva výrazný pokles objemovej aktivity radónu a gradient teploty si udržuje predchádzajúci trend. Táto výrazná zmena je zrejme spôsobená náhlou zmenou počasia, kedy došlo k ochladeniu a nárastu rýchlosti vetra. V súčasnej dobe nemáme presné údaje o rýchlostiach vetra, takže sa nedá previesť hlbšia analýza tejto náhlej zmeny v priebehu objemovej aktivity radónu. Od 21.3. gradient teploty stráca predchádzajúci trend a vykazuje iba malé výkyvy okolo nuly. Priebeh objemovej aktivity takisto iba málo kolíše okolo priemernej hodnoty. Toto poukazuje na indiferentné zvrstvenie atmosféry v tomto období. Taktiež v tomto období je potrebné zhodnotiť vplyv vetra na priebeh objemovej aktivity radónu.

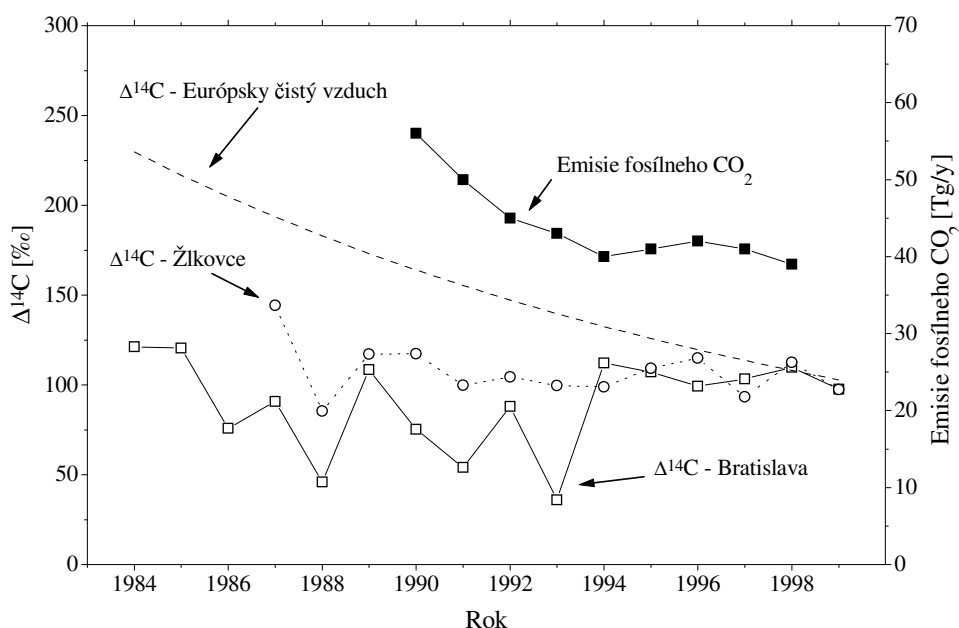


Obrázok 3: Priebeh objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  teplotného gradientu vo vonkajšej atmosfére v marci 2001

V ďalšom období plánujeme uskutočniť porovnávacie merania vertikálneho profilu objemovej aktivity radónu a teplotného gradientu. Simultánne merania objemovej aktivity radónu v dvoch výškach budú uskutočnené pomocou veľkoobjemovej scintilačnej komory a ionizačnej komory AlphaGuard. Toto meranie poskytne podrobnejší pohľad na vertikálny profil objemovej aktivity radónu vo vzťahu k atmosferickej stabilite určenej na základe merania teplotných gradientov a rýchlosti vetra v prízemnej

vrstve atmosféry.

Obsah  $^{14}\text{C}$  v atmosferickom  $\text{CO}_2$  sa meria na KJF FMFI UK v Bratislave od roku 1967 [34]. Vzorky pre stanovenie koncentrácií  $^{14}\text{C}$  sú odoberané absorpciou atmosferického  $\text{CO}_2$  v roztoku NaOH počas doby jedného mesiaca z výšky 15 m nad zemským povrchom. Meranie aktivity  $^{14}\text{C}$  vo vzorkách sa uskutočňuje nízkopozad'ovým proporcionálnym počítačom. Koncentrácia  $^{14}\text{CO}_2$  v pôdnom vzduchu sa meria od roku 1997. Vzorky sú odoberané z hĺbky 0,8 m.



Obrázok 4: Priemerné ročné priebehy  $\Delta^{14}\text{C}$  v atmosfére Bratislavy a Žilkoviec. Dlhodobý trend pozad'ovej úrovne  $\Delta^{14}\text{C}$  (Európsky čistý vzduch). Emisie fosílného  $\text{CO}_2$ , odhad pre Slovenskú republiku [35]

Na obrázku 4 môžeme vidieť dlhodobý vývoj  $\Delta^{14}\text{C}$  vo vonkajšej atmosfére v Bratislave a Žilkovciach. Pred rokom 1994 bola hodnota  $\Delta^{14}\text{C}$  oproti pozad'ovej úrovni pre Európsky čistý vzduch v Bratislave nižšia približne o 50% a pre Žilkovce približne o 20%. Po roku 1994 sa hodnota  $\Delta^{14}\text{C}$  blíži k pozad'ovej úrovni a v súčasnej dobe je rozdiel pre Bratislavu aj Žilkovce oproti Európskemu čistému vzduchu približne 10%. Emisie fosílného  $\text{CO}_2$  sú vypočítané na základe ekonomických štatistických údajov. Hodnota v roku 1990 sa pohybovala okolo 57 Tg/rok, po roku 1994 táto hodnota klesla na 41 Tg/rok [35].



Na záver je potrebné uskutočniť sériu meraní exhalačných rýchlostí radónu z pôdy. Predovšetkým treba určiť vplyv atmosferických prvkov na exhalačnú rýchlosť radónu z pôdy a teda jej sezónnu závislosť. Viacerí autori uvádzajú [11, 22], že sezónne variácie exhalačnej rýchlosti neboli pozorované, ale táto skutočnosť nemusí byť splnená v každej lokalite. Aplikčné využitie exhalačnej rýchlosti radónu bude zamerané na určovanie exhalácií pôdneho a fosílného CO<sub>2</sub> do vonkajšej atmosféry. Na toto je potrebné podrobne analyzovať údaje pôdneho a atmosferického  $\Delta^{14}\text{C}$  za obdobie predchádzajúcich rokov a precízne odhadnúť vplyv atmosferickej stability na výsledné hodnoty  $\Delta^{14}\text{C}$  v prízemnej vrstve atmosféry.

## Zoznam použitej literatúry

- [1] Cothorn, C.R., Smith, J.E., Environmental Radon, Plenum Press, New York (1987)
- [2] Measurement of Radon and Radon Daughters in Air, NCRP Report No 97, (1988)
- [3] Wilkening, M., Radon in the Environment, Studies in Environmental Science 40, (1990)
- [4] Kubů, M., Nový typ detektora radónu s aktívnym uhlím, Rádioaktivita v životnom prostredí, I.Konferencia, Spišská Nová Ves, 21-22.10.1997
- [5] Gessel, T.F., Background Atmospheric  $^{222}\text{Rn}$  Concentrations Outdoors and Indoors: a Review, Health Physics, Vol. 45, No 2, 289-302 (1983)
- [6] Porstendörfer, J., Butterweck, G., Reineking, A., Daily Variation of the Radon Concentration Indoors and Outdoors and the Influence of Meteorological Parameters, Health Physics, Vol. 67, No 3, 283-287 (1994)
- [7] Fontan, J., Birot, A., Blanc, D., Bouville, A., Druilhet, A., Measurement of the diffusion of radon, thoron and their radioactive daughter products in the lower layers of the Earth's atmosphere, Tellus XVIII (1966),2
- [8] Minato, S., Seasonal Variations in Radon Concentrations in the Lower Atmosphere at Nagoya, Reports of the Government Industrial Research Institute, Nagoya, 37(9/10), 233-240 (1988)
- [9] Garzon, L., Juanco, J.M., Perez, J.M., Fernandez, J.M., Arganza, B., The Universal Rn Wave An Approach, Health Physics, Vol. 51, No. 2, 185-195 (1986)
- [10] Jacobi, W., André, K., The Vertical Distribution of Radon  $^{222}\text{Rn}$ , Radon  $^{220}\text{Rn}$  and Their Decay Products in the Atmosphere, Journal of Geophysical Research, Vol.68, No. 13, 3799-3814 (1963)
- [11] Rehs, B., Reineking, A., Wendet, J., Porstendörfer, J.: The influence of meteorological parameters on  $^{222}\text{Rn}$  exhalation rate from soil to the atmosphere, Universität Göttingen, European Conference on Protection against Radon at Home and at Work, Praha (1997)

- [12] Gajdar, B., Porovnanie jednotlivých klasifikácií stability ovzdušia, Diplomová práca, PF UK, Bratislava (1974)
- [13] Cohen, L.D., Barr, S., Krablin, R., Newstein, H., Steady-State Vertical Turbulent Diffusion of Radon, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 77, No. 15, pp 2654–2668, (1972)
- [14] Moses, H., Stehney, A.F., Lucas, H.F., Jr., The Effect of Meteorological Variables upon the Vertical and Temporal Distributions of Atmospheric Radon, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 65, No. 4, pp 1223–1238, (1960)
- [15] Lee, H.N., and Larsen, R.J., Vertical Diffusion in the Lower Atmosphere Using Aircraft Measurement of  $^{222}\text{Rn}$ , *Journal of Applied Meteorology*, Vol.36, pp 1262–1270 (1997)
- [16] Guadelia, D., Ntsila, A., Druilhet, A., and Fontan, J., Monitoring of the Atmospheric Stability above an Urban and Suburban Site Using Sodar and Radon Measurements, *Journal of Applied Meteorology*, Vol.19, 839-848 (1980)
- [17] Meteorologický slovník výkladový terminologický, Ministerstvo životného prostredia ČR, Praha (1993)
- [18] Sesana, L., Barbieri, L., Facchini, U. and Marcazzan, G.,  $^{222}\text{Rn}$  as a Tracer of Atmospheric Motions: Study in Milan, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 78, No.1, 65-71 (1998)
- [19] Šivo, A., Povinec, P., Usačev, S., Burčuladze, A. A., Pagava, S. V., Toganidze, G. I., Uhlík  $^{14}\text{C}$  v biosfére v okolí Bratislavy a Tbilisi, *Acta Facultatis Rerum Naturalium Universitas Comenianae — Formatio et Protectio Naturae VII*, SPN Bratislava (1981)
- [20] Haszpra, L., Carbon dioxide concentration measurements at a rural site in Hungary, *Tellus* 47B (1995), pp 17–22
- [21] Levin, I., Graul, R., Trivett, N. B. A., Long-term observations of atmospheric  $\text{CO}_2$  and carbon isotopes at continental sites in Germany, *Tellus* 47B (1995), pp 001–012

- [22] Dörr, H., Münnich, K. O.,  $^{222}\text{Rn}$  flux and soil air concentration profiles in West-Germany. Soil  $^{222}\text{Rn}$  as tracer for gas transport in the unsaturated soil zone, *Tellus* 42B (1990), pp 20–28
- [23] Dörr, H., Münnich, K. O., Annual variation in soil respiration in selected areas of the temperate zone, *Tellus* 39B (1987), pp 114–121
- [24] Holý, K., Matoš, M., Stanys, T., Holá, O., Polášková, A., Bosá, I., Testing of the  $^{222}\text{Rn}$  as a tool for the determination of  $\text{CO}_2$  exhalation rates from the soil, II. Štiavnické dni '2000, Banská Štiavnica, 6.–7.10.2000
- [25] Matoš, M.,  $^{222}\text{Rn}$  v pôdnom vzduchu a jeho využitie pre štúdium exhalácie  $\text{CO}_2$  z pôdy, Diplomová práca, MFF UK, Bratislava (1998)
- [26] Dörr, H., Münnich, K. O., Annual variations of the  $^{14}\text{C}$  content of soil  $\text{CO}_2$ , *Radiocarbon*, Vol 28, No. 2A, pp 338–345, (1986)
- [27] Dörr, H., Münnich, K. O.,  $\text{CO}_2$  and Radon 222 as Tracers for Atmospheric Transport, *Journal of Geophysical Research*, Vol 88, No. C2, pp 1309–1313, (1983)
- [28] Dörr, H., Münnich, K. O., Carbon-14 and carbon-13 in soil  $\text{CO}_2$ , *Radiocarbon*, Vol 22, No. 3, pp 909–918, (1980)
- [29] Beláň, T., a kol., Investigation of radionuclide variations in the Bratislava air.
- [30] Chaliotis, A., Analýza ročného priebehukoncentrácie radónu vo vonkajšej atmosfére, Diplomová práca, MFF UK, Bratislava, (1996)
- [31] Bosá, I., Objemová aktivita  $^{222}\text{Rn}$  vo vonkajšej atmosfére a jej vzťah k atmosférickej stabilite, Diplomová práca, MFF UK, Bratislava, (1999)
- [32] Ward, D.C, Borak, T.B.: Determinatin of Time-Varying  $^{222}\text{Rn}$  Concentratins Using Flow-Through Scintillation Flasks, *Health Physics*, Vol. 61, No. 6, 799-807 (1991)
- [33] Genrich, V.: Alpha Guaard PQ 2000/Mc 50, Multiparameter Radon Monitor, Geitron Instruments GmbH, Frankfurt, Germany
- [34] Povinec, P., Šivo, A., Chudý, M., Burchuladze, A., A., Pagava, S., V., Toganidze, G. I., Eristavi, I., V., Seasonal variations of antropoghenic radiocarbon in the

atmosphere, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B17, pp 556–559 (1986)

- [35] Marečková, K., et al., Arrangement of the international duties of Slovakia — Evaluation of pollution of the atmosphere and its global risks, Report of the Slovak Hydrometeorological Institute, Bratislava (2000)