

# AKTIVNOSTI $^{14}\text{C}$ U ATMOSFERI I BILJU U OKOLICI NUKLEARNE ELEKTRANE KRŠKO (NEK) – ISKUSTVA NAKON 10 GODINA MONITORINGA

*Ines Krajcar Bronić<sup>1</sup>, Borut Breznik<sup>2</sup>, Aleš Volčanšek<sup>2</sup>, Jadranka Barešić<sup>1</sup>,  
Damir Borković<sup>1</sup>, Andreja Sironić<sup>1</sup>, Nada Horvatinčić<sup>1</sup>, Bogomil Obelić<sup>1</sup> i  
Ivanka Lovrenčić Mikelić<sup>1</sup>*

<sup>1</sup>Institut Ruđer Bošković, Zagreb, Hrvatska  
<sup>2</sup>Nuklearna elektrana Krško, Krško, Slovenija  
e-mail: [krajcar@irb.hr](mailto:krajcar@irb.hr)

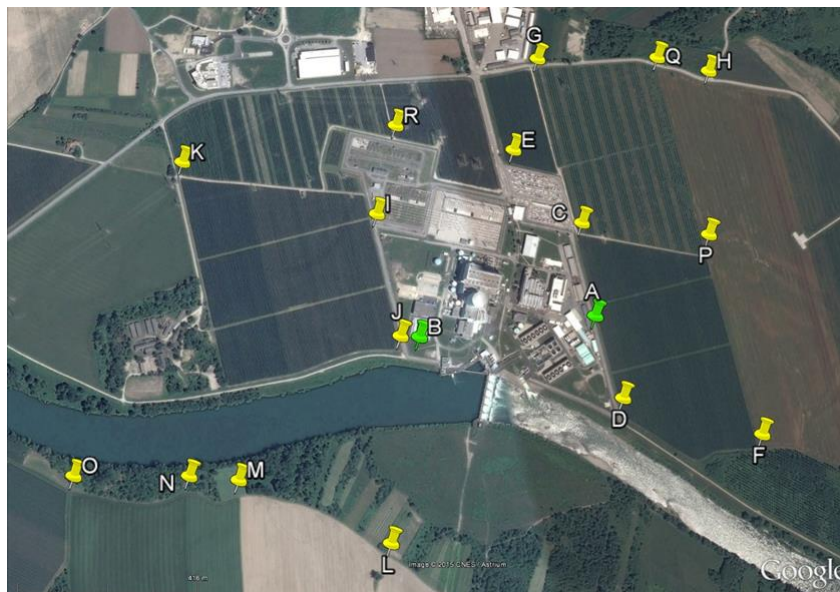
## UVOD

Sustavno praćenje aktivnosti  $^{14}\text{C}$  atmosferskog  $\text{CO}_2$  i bioloških uzoraka (voće – uglavnom jabuke, povrće, žitarice, kukuruz) u neposrednoj okolini Nuklearne elektrane Krško (NEK) provodi se od 2006. godine sa ciljem procjene mogućeg utjecaja NEK-a na razinu aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u okolišu te na efektivnu dozu koju primi lokalno stanovništvo putem prehrane [1-4]. Posebna je pozornost posvećena praćenju utjecaja remonta elektrane, koji se provodi svakih 18 mjeseci, na aktivnost  $^{14}\text{C}$  u okolišu. U radu će se pokazati značajke aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u okolišu elektrane i neki zaključci zasnovani na dugogodišnjem iskustvu monitoringa.

## MATERIJAL I METODE

Atmosferski  $\text{CO}_2$  sakuplja se na lokacijama A i B unutar kruga NEK-a (Slika 1) apsorpcijom u zasićenoj otopini  $\text{NaOH}$ , obično u dvomjesečnim intervalima te u kraćim intervalima tijekom i neposredno nakon remonta. U laboratoriju se dobiveni  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  prevodi u benzen [4-6]. Biološki materijal koji integrira  $^{14}\text{C}$  iz atmosfere tijekom relativno kratkog vegetacijskog razdoblja (plodovi jabuke, kukuruz, žitarice i slično) skuplja se na početku vegetacijskog razdoblja (lipanj ili srpanj) te ujesen (prije berbe, rujana ili listopada) na lokacijama C do Q (Slika 1). Referentni uzorci bilja sakupljaju se na kontrolnoj točki kraj Dobove, 11,2 km (zračna udaljenost) jugoistočno od NEK-a, na kojoj se ne očekuje utjecaj zračnih ispusta iz NEK-a. Biološki uzorci se nakon sušenja i karbonizacije spaljuju u struji kisika. Dobiveni  $\text{CO}_2$  se apsorbira u smjesi Carbosorba<sup>®</sup>E i Permafluora<sup>®</sup>E. U oba slučaja aktivnost  $^{14}\text{C}$  mjeri u tekućinskom scintilacijskom brojaču (LSC) Quantulus 1220 [4,5].

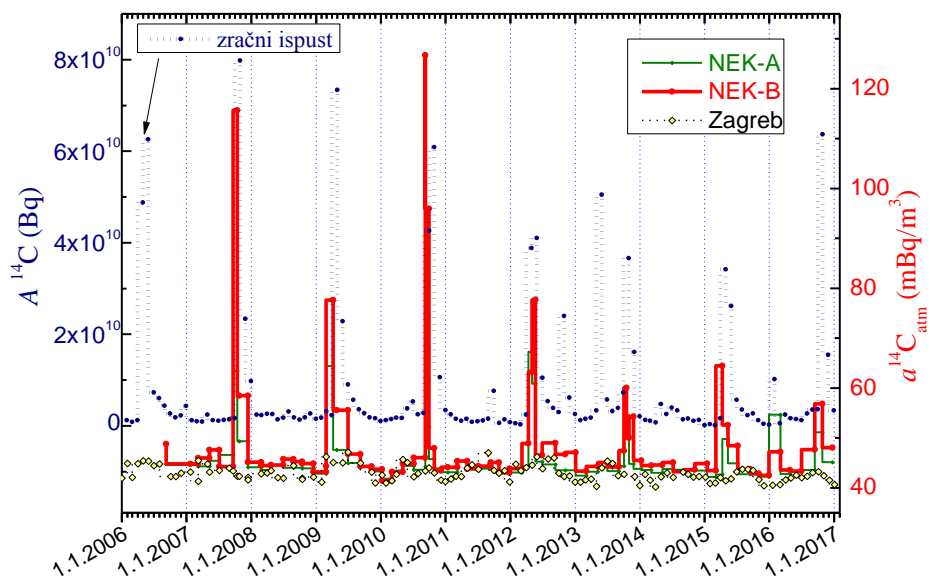
Rezultati su izraženi kao relativna specifična aktivnost ugljika  $^{14}\text{C}$  ( $a^{14}\text{C}$ ) u jedinicama *percent Modern Carbon* (pMC). Vrijednost  $a^{14}\text{C} = 100$  pMC odgovara specifičnoj aktivnosti atmosfere nezagađene antropogenim utjecajem, koja iznosi  $(226 \pm 12)$  Bq/kg ugljika, odnosno  $42 \text{ mBq/m}^3$  zraka. U daljnjem tekstu za  $a^{14}\text{C}$  koristimo izraz "aktivnost  $^{14}\text{C}$ ".



Slika 1. Lokacije uzorkovanja za praćenje aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u okolici NEK-a: A, B: atmosferski  $\text{CO}_2$ , C – Q: bilje.

## REZULTATI – ATMOSFERA

Aktivnost  $^{14}\text{C}$  ( $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$ ) u atmosferskom  $\text{CO}_2$  na lokacijama A i B unutar kruga Nuklearne elektrane Krško od početka praćenja u 2006. godini do kraja 2016. prikazana je na Slici 2. Prikazane su i aktivnosti  $A^{14}\text{C}$  u mjesečnim zračnim ispuštima, kao i  $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$  u atmosferi u Zagrebu. Prosječna vrijednost atmosferske aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u Zagrebu za navedeno razdoblje iznosi  $102,3 \pm 1,2$  pMC ( $42,9 \pm 0,5 \text{ mBq/m}^3$ ). U godinama kada nema remonta (2008., 2011., 2014.) srednje i maksimalne vrijednosti unutar NEK-a ne odstupaju značajno od odgovarajućih vrijednosti u Zagrebu. U vrijeme remonta dolazi do porasta  $A^{14}\text{C}$  u zračnim ispuštima te se opaža i povišenje  $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$  na lokacijama B (više) i A, koje traje dva do tri mjeseca. Srednje godišnje vrijednosti na lokaciji A su tada više nego u Zagrebu, a najviše su na lokaciji B. Razlika se pogotovo primjećuje u maksimalnim vrijednostima  $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$  u (dvo)mjesečnim uzorcima (Slika 2).

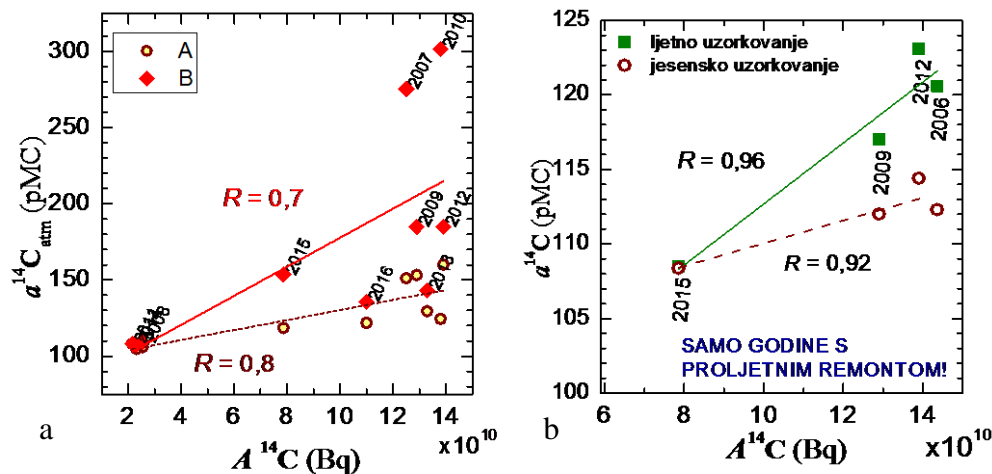


Slika 2. Aktivnost  $^{14}\text{C}$  u atmosferskom  $\text{CO}_2$  ( $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$ ) na lokacijama A i B unutar NEK-a, te u Zagrebu (desna ordinata) od 2006. do 2016. Aktivnost  $^{14}\text{C}$  u ispustu ( $A^{14}\text{C}$ ) dana je na lijevoj ordinati ([8] i podaci dobiveni iz NEK-a).

Ukupne godišnje aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u zračnim ispustima ( $A^{14}\text{C}$ ) kretale se oko  $2 \times 10^{10}$  Bq u godinama bez remonta, te od  $12,5 \times 10^{10}$  Bq do  $14,4 \times 10^{10}$  Bq u godinama kada se provodio remont. U 2015. godini ukupna godišnja ispuštena aktivnost  $A^{14}\text{C}$  bila je znatno niža ( $7,9 \times 10^{10}$  Bq), što se odrazilo na niže vrijednosti  $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$  (Slika 2). Odnos između maksimalnih mjesečnih vrijednosti  $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$  i ukupne godišnje  $A^{14}\text{C}$  (Slika 3a) ukazuje na dobru korelaciju za godine s remontom. Koeficijent korelacije je  $R = 0,7$  za lokaciju B i  $R = 0,8$  za lokaciju A. Odstupanja od pravca korelacije kod viših godišnjih aktivnosti  $A^{14}\text{C}$  mogu se objasniti nepodudaranjem perioda sakupljanja atmosferskog  $\text{CO}_2$  i perioda s najvećim (dnevним) ispustima, te raspodjelom ispusta aktivnosti tijekom godine. Može se zaključiti da najviša izmjerena aktivnost  $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$  u atmosferskom  $\text{CO}_2$  u razdoblju remonta daje grubu procjenu ispuštene aktivnosti  $^{14}\text{C}$  tijekom remonta.

## REZULTATI – BILJE

Izražavanje rezultata mjerenja aktivnosti  $^{14}\text{C}$  kao  $a^{14}\text{C}$  podrazumijeva i normalizaciju vrijednosti  $\delta^{13}\text{C}$  u uzorku na dogovorno određenu vrijednost  $\delta^{13}\text{C} = -25$  ‰. Izmjerene su vrijednosti  $\delta^{13}\text{C}$  u 71 uzorku bilja i ustanovljeno je da treba koristiti vrijednosti  $\delta^{13}\text{C} = -27$  ‰ za C3 biljke (jabuke, žitarice,



Slika 3. a) Ovisnost najviše mjesečne aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u atmosferskom  $\text{CO}_2$ ,  $a^{14}\text{C}_{\text{atm}}$ , na lokacijama A i B unutar NEK-a o ukupnoj godišnjoj aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u zračnim ispuštima ( $A^{14}\text{C}$ ). b) Ovisnost srednje vrijednosti  $a^{14}\text{C}$  u uzorcima bilja iz unutrašnjeg kruga u ljetnom (■) i jesenskom uzorkovanju (○) o  $A^{14}\text{C}$  za godine s proljetnim remontom.  $R$  - Pearsonov koeficijent korelacije. Brojevi uz oznake na slici označavaju godine.

uljana repica) i  $\delta^{13}\text{C} = -12 \text{ ‰}$  za C4 biljke (kukuruz) [9]. Pokazano je da nema značajne razlike između vrijednosti  $\delta^{13}\text{C}$  suhih i karboniziranih uzoraka bilja, tj. da način obrade uzorka ne uzrokuje izotopnu frakcionaciju i ne utječe na izmjerenu vrijednost  $a^{14}\text{C}$  [9].

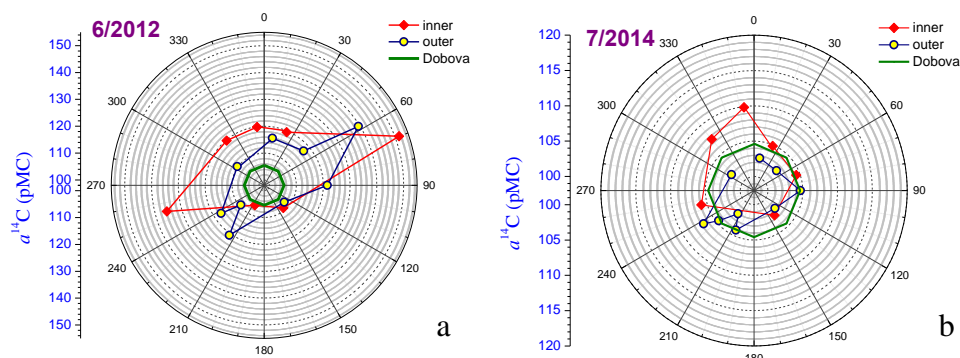
Raspodjela aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u bilju najbolje se vidi na tzv. polarnim dijagramima. Slika 4 prikazuje dva primjera raspodjele  $^{14}\text{C}$  aktivnosti u bilju za proljetno uzorkovanje u godini kad je proveden proljetni remont (Slika 4a) te u godini kad prije uzorkovanja nije bilo ni proljetnog ni jesenskog remonta (Slika 4b). Uočavaju se sljedeće karakteristike:

1) Razlikuju se lokacije unutrašnjeg (C, D, E, I, J, R) i vanjskog kruga (F, G, H, K, L, M, N, O, P, Q) oko NEK, te kontrolna točka Dobova. Najviše aktivnosti  $^{14}\text{C}$  izmjerene su u unutrašnjem krugu (prosječna vrijednost  $109,7 \pm 4,1 \text{ pMC}$ ), a u vanjskom krugu su nešto niže ( $106,4 \pm 1,9 \text{ pMC}$ ). Prosječna aktivnost  $^{14}\text{C}$  u biološkom materijalu na kontrolnoj lokaciji ( $103,6 \pm 1,0 \text{ pMC}$ ) ne razlikuje se značajno od prosječne vrijednosti atmosferske aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u Zagrebu u razdoblju 2006. – 2016.,  $102,3 \pm 1,2 \text{ pMC}$ .

2) Proljetni remont znatno utječe na raspodjelu aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u bilju u ljetnom uzorkovanju, nešto manje u jesenskom uzorkovanju (Slika 3b i Slika 4a). U godinama u kojima nije proveden remont vrijednosti  $a^{14}\text{C}$  u okolini

NEK-a ne razlikuju se značajno od onih na kontrolnoj lokaciji u Dobovi (Slika 4b). Remont u jesen, nakon završetka vegetacijskog razdoblja, ne utječe značajno na aktivnost  $^{14}\text{C}$  u biljkama u sljedećoj godini [3].

3) Prostorna raspodjela  $a^{14}\text{C}$  određena je smjerom prevladavajućih vjetrova (SW-NE). To je vidljivo za obje grupe lokacija (Slika 4a).



Slika 4. Primjeri prostorne raspodjele  $a^{14}\text{C}$  u bilju (polarni dijagrami) u proljetno-ljetnom uzorkovanju u slučaju a) proljetnog remonta, b) godine bez remonta. Obratiti pozornost na različite brojčane vrijednosti  $a^{14}\text{C}$ .

U godinama s proljetnim remontom izmjerena je viša  $a^{14}\text{C}$  u proljetno-ljetnim uzorcima, koji koriste  $\text{CO}_2$  iz atmosfere neposredno nakon remonta, nego u jesenskim uzorcima. Uočava se dobra korelacija između ispuštene aktivnosti  $A^{14}\text{C}$  i srednje vrijednosti  $a^{14}\text{C}$  na unutarnjim lokacijama (Slika 3b). I ovaj odnos pokazuje da  $^{14}\text{C}$  u zračnim ispuštima ima mjerljiv utjecaj i na biološki materijal u bliskoj okolini NEK-a. Međutim, taj utjecaj nije značajan sa stanovišta povećanja doze na stanovništvo [1-3].

## ZAKLJUČAK

Praćenje aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u okolini NEK u razdoblju od 2006. do kraja 2016. godine pokazuje da je utjecaj  $^{14}\text{C}$  ispuštenog u okoliš zračnim putem mjerljiv i u atmosferskom  $\text{CO}_2$  i u biljkama koje koriste  $\text{CO}_2$  za fotosintezu. Taj je utjecaj kratkoročan i prostorno ograničen na najbližu okolinu. Uočena je korelacija između ukupno ispuštene aktivnosti  $A^{14}\text{C}$  i izmjerenih vrijednosti  $a^{14}\text{C}$  u  $\text{CO}_2$  i u bilju.

## Zahvala

Praćenje aktivnosti  $^{14}\text{C}$  u atmosferi i bilju provodi se u okviru projekta praćenja radioaktivnosti u široj okolini NEK-a.

## LITERATURA

- [1] Obelić B, Krajcar Bronić I, Barešić J, Sironić A, Breznik B.  $^{14}\text{C}$  aktivnost bioloških uzoraka i atmosferskog  $\text{CO}_2$  u neposrednoj okolici Nuklearne elektrane Krško. U: Barišić D, Grahek Ž, Krajcar Bronić I, Miljanić S, ur. Zbornik radova Sedmog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 29-31. svibnja 2008; Zagreb, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2008. str. 222-229.
- [2] Obelić B, Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Sironić A, Barešić J, Rajtarić A, Breznik B, Volčanšek A. Utjecaj remonta Nuklearne elektrane Krško na aktivnost  $^{14}\text{C}$  u atmosferi i bilju. U: Krajcar Bronić I, Kopjar N, Milić M, Branica G, ur. Zbornik radova Osmog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja: 13.-15. travnja 2011; Krk, Hrvatska. Zagreb; HDZZ; 2011. str. 347-54.
- [3] Krajcar Bronić I, Obelić B, Breznik B, Volčanšek A, Barešić J, Horvatinčić N, Rajtarić A. Šest godina sustavnog praćenja  $^{14}\text{C}$  u atmosferi i bilju u okolici Nuklearne elektrane Krško (NEK). U: Knežević Ž, Majer M, Krajcar Bronić I, ur. Zbornik radova Devetog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 10-12. travnja 2013; Zagreb, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2013. str. 468-474.
- [4] Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Barešić J, Obelić B. Measurement of  $^{14}\text{C}$  activity by liquid scintillation counting. *App. Radiat. Isotopes* 2009;67:800-4.
- [5] Horvatinčić N, Barešić J, Krajcar Bronić I, Obelić B. Measurements of low  $^{14}\text{C}$  activities in a liquid scintillation counter in the Zagreb Radiocarbon Laboratory. *Radiocarbon* 2004; 46/1:105-116.
- [6] Barešić J, Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Obelić B. Mjerenje niskih  $^{14}\text{C}$  aktivnosti uzoraka u obliku benzena u tekućinskom scintilacijskom brojaču. U: Garaj-Vrhovac V, Kopjar N, Miljanić S, ur. Zbornik radova Šestog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 18.-20. travnja 2005; Stubičke Toplice, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2005. str. 158-163.
- [7] Barešić J, Krajcar Bronić I, Horvatinčić N, Obelić B. Mjerenje niskih  $^{14}\text{C}$  aktivnosti uzoraka pripremljenih metodom apsorpcije  $\text{CO}_2$ . U: Krajcar Bronić I, Miljanić S, Obelić B, ur. Zbornik radova Petog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 9.-11. travnja 2003; Stubičke Toplice, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2003. str. 267-272.
- [8] Stibilj V, Svetek B, Trkov Z, Volčanšek A, Breznik B. Measurement of  $^{14}\text{C}$  activity in exhaust air at the Krško Nuclear Power Plant. U: Krajcar Bronić I, Kopjar N, Milić M, Branica G, ur. Zbornik radova Osmog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja; 13.-15. travnja 2011; Krk, Hrvatska. Zagreb: HDZZ; 2011. str. 341-346.
- [9] Šturm M, Vreča P, Krajcar Bronić I. Carbon isotopic composition ( $\delta^{13}\text{C}$  and  $^{14}\text{C}$  activity) of plant samples in the vicinity of the Slovene nuclear power plant. *Journal of Environmental Radioactivity* 2012;110:24-29.

## **<sup>14</sup>C ACTIVITY IN THE ATMOSPHERE AND BIOLOGICAL SAMPLES IN THE VICINITY OF THE KRŠKO NUCLEAR POWER PLANT – 10 YEARS OF EXPERIENCE**

*Ines Krajcar Bronić<sup>1</sup>, Borut Breznik<sup>2</sup>, Aleš Volčanšek<sup>2</sup>, Jadranka Barešić<sup>1</sup>,  
Damir Borković<sup>1</sup>, Andreja Sironić<sup>1</sup>, Nada Horvatinčić<sup>1</sup>, Bogomil Obelić<sup>1</sup>  
and Ivanka Lovrenčić Mikelić<sup>1</sup>*

<sup>1</sup>Ruđer Bošković Institute, Zagreb, Croatia

<sup>2</sup>Nuklearna elektrarna Krško, Krško, Slovenia

e-mail: [krajcar@irb.hr](mailto:krajcar@irb.hr)

Systematic and continuous monitoring <sup>14</sup>C activity in atmospheric CO<sub>2</sub> and biological samples (mostly apples, vegetable, cereals, corn) in the vicinity of the Nuclear Power Plant Krško (NEK) in Slovenia has been performed since 2006. The aim of the monitoring is to determine <sup>14</sup>C distribution in a close vicinity of the power plant and to estimate possible contribution of NEK to the effective dose of the local population through food chain. In this paper we describe some characteristics of the <sup>14</sup>C distribution in the environment of NEK.

The <sup>14</sup>C activity of atmospheric CO<sub>2</sub> at two locations inside the NEK area is on the average slightly higher than that in Zagreb. It depends on the <sup>14</sup>C activity (A<sup>14</sup>C) released in air-born effluent. The influence of the <sup>14</sup>C releases has been observed also in plants. Higher <sup>14</sup>C activity in plants is most pronounced shortly after spring refuelling, when plants use atmospheric CO<sub>2</sub> that contains <sup>14</sup>C released from NEK. The influence of the released air-born <sup>14</sup>C activity is measurable in both atmospheric CO<sub>2</sub> and in plants; the higher the activity of gaseous effluent, the higher the atmospheric and plant <sup>14</sup>C activity. However, the influence is temporally and spatially limited. Average <sup>14</sup>C activity in plants at the control location Dobova does not differ from the average atmospheric <sup>14</sup>C activity in Zagreb.

It was shown earlier that the slightly increased <sup>14</sup>C activity in plants does not contribute significantly to the effective dose of the local population due to ingestion of <sup>14</sup>C. According to the experience of the whole monitoring, <sup>14</sup>C is the only released radionuclide detected in the environment of NEK (Report IJS-DP-12059).