



Univerzita Komenského v Bratislave
Fakulta matematiky, fyziky a informatiky



Mgr. Markus Helej

Autoreferát dizertačnej práce

KONTINUÁLNE METÓDY MERANIA IZOTOPOV RADÓNU A ICH APLIKÁCIE

na získanie akademického titulu philosophiae doctor

**v odbore doktorandského štúdia:
Jadrová a subjadrová fyzika**

Bratislava 2024

Dizertačná práca bola vypracovaná v externej forme doktorandského štúdia na Katedre jadrovej fyziky a Biofyziky, Fakulty matematiky, fyziky a informatiky Univerzity Komenského v Bratislave.

Predkladateľ: Mgr. Markus Helej
 Fakulta matematiky, fyziky a informatiky UK
 Mlynská dolina
 84104 Bratislava

Školiteľ: prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc.
 Fakulta matematiky, fyziky a informatiky UK
 Mlynská dolina
 84104 Bratislava

11-60-13 Jadrová a subjadrová fyzika

Predseda odborovej komisie:
prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc.
Fakulta matematiky, fyziky a informatiky UK
Mlynská dolina
84104 Bratislava

Obsah

1. Úvod.....	1
2. Ciele dizertačnej práce.....	2
3. Výsledky dizertačnej práce.....	3
3.1 Porovnanie kontinuálnych detektorov radónu na báze scintilačných komôr.....	3
3.2 Štúdium správania sa produktov premeny od radónu v atmosfére.....	4
3.3 Vzťah medzi radónom, jeho produktami premeny, koncentráciou prachových častíc a meteorologickými parametrami.....	8
3.4 Výpočet rezidenčného času aerosólov.....	8
3.5 Model pre výpočet prírastku antropogénnej zložky prachových častíc.....	10
4. Literatúra použitá v autoreferát.....	14
5. Zoznam publikácií doktoranda.....	15
6. Záver.....	16

1. Úvod

Hlavný záujem o radón je spôsobený jeho negatívnymi účinkami na zdravie obyvateľstva a potrebu znižovať tieto účinky, t.j. regulovať ožiarenie radónom. K ostatným významným krokom v tomto smere patrí prijatie smernice Rady 2013/59 Euratom, ktorá ukladá členským štátom Európskej únie rozpracovať národné akčné radónové plány, v ktorých bude riešená stratégia ochrany pracovníkov a obyvateľstva pred radónom. Na Slovensku bol Národnou radou Slovenskej republiky schválený dňa 6. 2. 2018 nový zákon o radiačnej ochrane, ktorý okrem iného rieši aj ochranu obyvateľstva pred radónom a vytýčil aj ciele akčného radónového plánu pre Slovenskú republiku. V národnom akčnom pláne sa počíta aj s využitím skúseností pracovníkov KJFB FMFI UK v oblasti monitorovania radónu, hlavne pri vývoji metód.

Radón má okrem negatívnych účinkov aj pozitívne vlastnosti, ktoré je možné využiť pri riešení viacerých environmentálnych problémov, kde radón slúži ako stopovač rôznych procesov. Predložená práca sa zaoberá meraním a štúdiom správania sa radónu a jeho produktov premeny. Podporuje a rozširuje taktiež naše poznatky o správaní sa prachových častíc obsiahnutých v atmosférických aerosóloch. V práci sú podrobne analyzované výsledky z kontinuálne zaznamenávaných dát o objemovej aktivite radónu a ekvivalentnej objemovej aktivite v rokoch 2019 – 2022, počas 36 po sebe idúcich mesiacov. Sledovaním správania sa rovnovážneho faktora F sa zistilo, že proces odstraňovania prachových častíc mokrou a suchou depozíciou prevyšuje odstraňovanie

radónu vertikálnym transportom do atmosféry, ale existujú prípady, kedy je v podmienkach zvýšeného vertikálneho premiešavania v atmosfére tento efekt potlačený. Doba zotrvania častíc atmosférického aerosólu je funkciou ich odstraňovania z atmosféry v dôsledku suchej (difúzia, sedimentácia a resuspenzia) a mokrej depozície (zrážky). Odhad doby zotrvania aerosólov v atmosfére bol v tejto práci založený na meraniach aktivít ^{210}Pb , radónu a produktov premeny radónu (^{214}Pb a ^{214}Bi). Pri analýze denných vln koncentrácie prachových častíc PM bolo zistené, že sú počas pracovných dní vyššie ako cez víkend. Časová zmena koncentrácie prachových častíc v atmosfére Bratislavy pre jednotlivé dni týždňa bola opísaná pomocou jednoduchého modelu, ktorý poslužil na odhad denného antropogénneho príspevku ku koncentrácii $\text{PM}_{2.5}$ v atmosfére Bratislavy.

2. Ciele dizertačnej práce

Ciele dizertačnej práce sú v súlade s potrebami riešenia úloh radónovej problematiky na Katedre jadrovej fyziky a biofyziky FMFI UK v Bratislave. Tieto sú zamerané hlavne na environmentálne aplikácie ^{222}Rn a jeho krátkožijúcich produktov premeny. Hlavnými cieľmi práce sú:

Získanie a analýza dát o objemovej aktivite ^{222}Rn . Cieľom je pokračovať v sledovaní dlhodobých zmien koncentrácie radónu v atmosfére a tiež niektorých parametrov atmosféry.

Štúdium správania sa rovnovážneho faktora F medzi objemovou aktivitou ^{222}Rn a objemovými aktivitami jeho krátkožijúcich produktov premeny (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po) v atmosfére za rôznych meteorologických podmienok. Údaje o F faktore sa v literatúre rôznia. Hustotu rovnovážneho poklesu je potrebné poznať pre čo najpresnejšie výpočty efektívnej dávky od ^{222}Rn a tiež pre výpočty rezidenčného času aerosólov v atmosfére na základe radónových dát.

Vývoj a postavenie vysokocitlivého kontinuálneho monitora objemovej aktivity ^{222}Rn v atmosfére a tiež kompletizácia a spojzdenie monitora krátkožijúcich produktov premeny ^{222}Rn . uvedené detekčné systémy budú využité pre riešenie úloh 1 až 2.

Inštalácia meracích zariadení v areáli meteorologickej stanice, čím sa vytvorí jedno integrované pracovisko na výskum atmosferickej rádioaktivity na FMFI UK. V

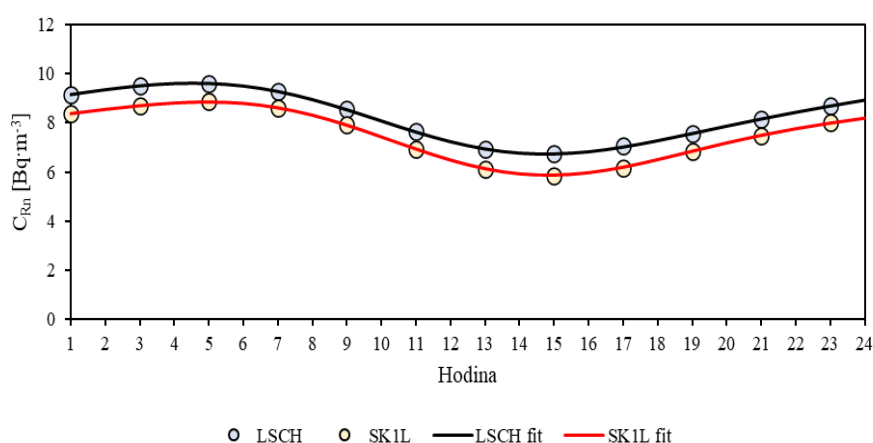
d'álšej časti práce sa budem podrobnejšie zaoberať stavom rozpracovania jednotlivých detekčných systémov.

3. Výsledky dizertačnej práce

Výsledky predkladanej dizertačnej práce rozšírili naše doterajšie poznatky o správaní sa radónu vo vonkajšej atmosfére. V nasledujúcich odsekoch sú uvedené najdôležitejšie výsledky tejto práce.

3.1 Porovnanie kontinuálnych detektorov radónu na báze scintilačných komôr

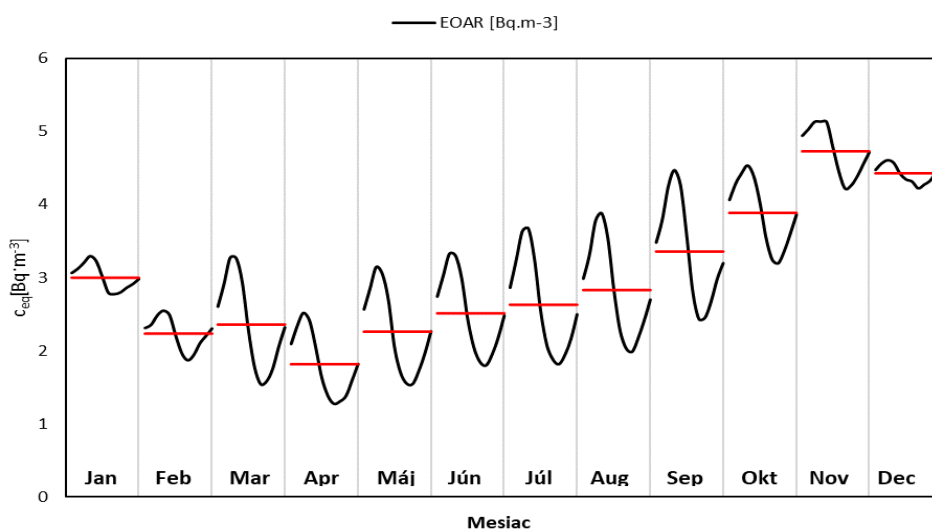
Kontinuálne meranie objemovej aktivity radónu (OAR) bolo realizované počas pomocou dvoch nezávisle kalibrovaných scintilačných detektorov v areáli fakulty Matematiky, Fyziky a Informatiky Univerzity Komenského v Bratislave. Detektory boli umiestnené vo vzdialenosti približne 220 m od seba. Veľkoobjemová scintilačná komora (LSCH) je trvalo umiestnená v laboratóriu F1 256 na FMFI UK a slúži ako referenčný monitor OAR [POVINEC a kol., 1992]. Scintilačná komora s objemom 1 ℓ (SK1L) bola po testovaní vo vnútornej atmosfére umiestnená v areáli meteorologických pozorovaní a v októbri v roku 2018 bola uvedená do prevádzky. Terén na odberovej lokalite je trávnatý a rovinatý. Aktívne objemy scintilačných komôr sú 2,25 ℓ (LSCH) a 1,0 ℓ (SK1L). Vzduch sa odoberá z výšky 1,5 m cez plastovú hadicu a čerpanie prebieha pri prietoku $\sim 0,5 \text{ ℓ min}^{-1}$. Oba detektory pružne reagujú na zmeny koncentrácie OAR vo vonkajšej atmosfére. Korelácia priebehov OAR počas celého sledovaného obdobia bola $R^2 = 0,56$.



Obrázok 1 Stredná denná vlna OAR z LSCH a SK1L. Označené krúžkom sú 2 hodinové údaje, čiarou je označený 24 hodinový priebeh nafitovaný podľa Garzona [1986].

3.2 Štúdium správania sa produktov premeny od radónu v atmosfére

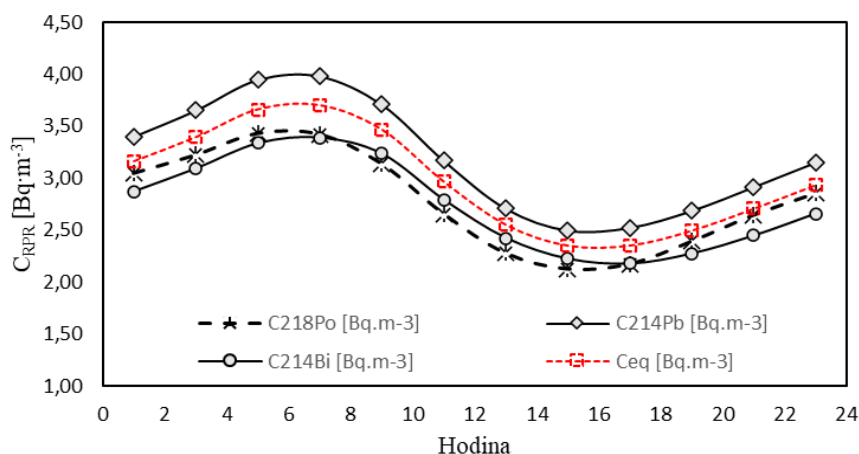
Detekčný systém pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu, ktorý bol po otestovaní vo vnútornej atmosfére bol trvalo umiestnený do vysunutého laboratória v areáli meteorologických pozorovaní na FMFI UK. Vďaka tomu boli v prevádzke až 3 detektory, ktoré v kontinuálnom režime zbierali údaje o rádioaktivite atmosféry. Kontinuálne meranie detekčného systému pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu prebiehalo od novembra 2019 do októbra 2022. V porovnaní s hodnotami OAR je hodnota korelačného koeficientu ekvivalentnej objemovej aktivity radónu (EOAR) všetkých spracovaných dát zo sledovaného obdobia $R^2 = 0,64$, $R^2 = 0,60$ pre ^{218}Po , $R^2 = 0,59$ pre ^{214}Pb a $R^2 = 0,58$ pre ^{214}Bi . Konštatujeme, že priebehy EOAR a jednotlivých krátkožijúcich produktov premeny sú v dobrej zhode. Hodnoty EOAR dosahujú maximá v jesenných a zimných mesiacoch.



Obrázok 2 Priemerné denné priebehy ekvivalentnej objemovej aktivity pre jednotlivé mesiace za obdobie rokov 2019-2022.

Z pomedzi krátkožijúcich produktov premeny radónu vykazovali najvyššiu priemernú hodnotu objemové aktivity ^{214}Pb ($A = 5,45 \pm 0,87$ [Bq·m⁻³]) v novembri. Objemové aktivity ^{218}Po ($A = 3,36 \pm 0,53$ [Bq·m⁻³]) boli o niečo nižšie, s najvyššou priemernou hodnotou opäť v novembri. Najvyššie priemerné mesačné hodnoty ^{214}Bi boli zaznamenané tiež v mesiaci november ($A = 4,38 \pm 0,67$ [Bq·m⁻³]). Najnižšiu priemernú hodnotu dosiahli objemové aktivity ^{214}Pb ($A = 1,89 \pm 0,47$ [Bq·m⁻³]) v apríli. Objemové aktivity ^{218}Po ($A = 1,58 \pm 0,44$ [Bq·m⁻³]) boli o niečo nižšie, s najnižšou priemernou hodnotou rovnako v apríli. Najnižšie priemerné mesačné hodnoty ^{214}Bi boli dosiahnuté tiež v mesiaci apríl ($A = 1,72 \pm 0,42$ [Bq·m⁻³]). Počas celého merania boli namerané

stredné hodnoty objemovej aktivity ^{218}Po $2,82\pm 0,43$ [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$], ^{214}Pb $3,28\pm 0,61$ [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$] a ^{214}Bi $2,78\pm 0,47$ [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]. Zo stredných denných vln pre jednotlivé ročné obdobia môžeme konštatovať, že najvyššie priemerné hodnoty pozorujeme v jesenných mesiacoch (september, október, november) a najnižšie v jarňých mesiacoch (marec, apríl, máj).

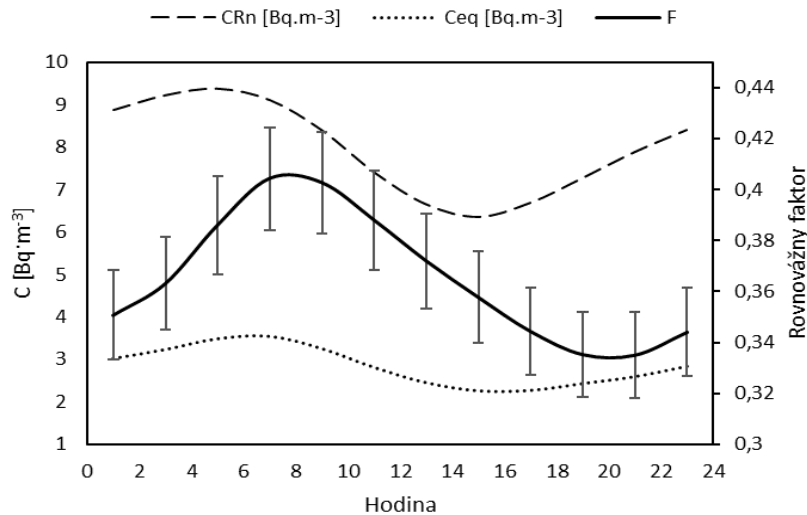


Obrázok 3 Denný priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity radónu (označený červenou prerušovanou čiarou a štvorcami), objemovej aktivity ^{218}Po (označený prerušovanou čiernou čiarou a hviezdíčkom), objemovej aktivity ^{214}Pb (označený plnou čiernou čiarou a kosoštvorcami) a ^{214}Bi (označený plnou čiarou a krúžkom) počas rokov 2019-2022.

Na charakterizovanie úrovne rovnováhy medzi radónom a jeho krátko žijúcimi produktmi premeny slúži parameter rovnovážny faktor F . Stredná hodnota rovnovážneho faktora F počas celého obdobia bola $F = 0,38$. Počas zimných a jesenných mesiacov, v ktorých je miera turbulentného premiešavania nižšia dosahuje rovnovážny faktor najvyššie hodnoty. Naopak, najnižšie stredné hodnoty je možné pozorovať v letných mesiacoch, kedy dochádza k intenzívnejšiemu premiešavaniu vzduchu.

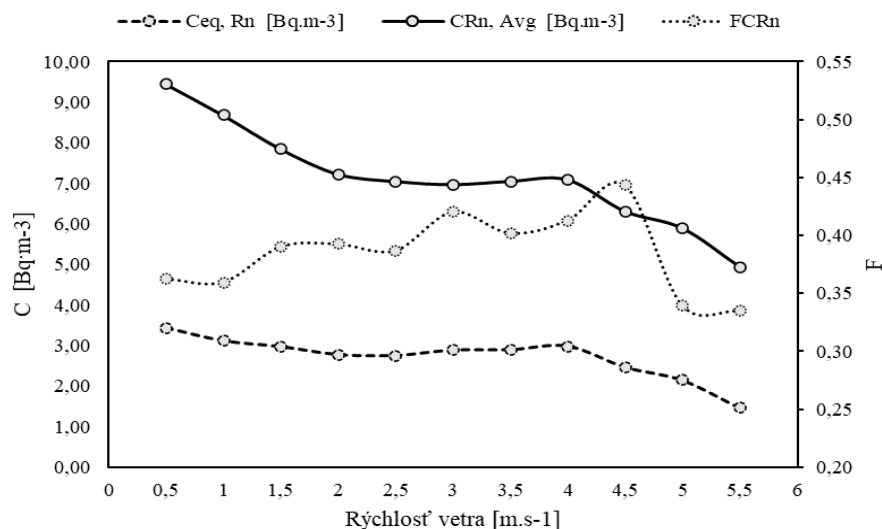
Stredné hodnoty rovnovážneho faktora F pre jednotlivé roky sú v dobrej zhode a stredné hodnoty F_1 , F_2 a F_3 ($^{218}\text{Po}/^{222}\text{Rn}$, $^{214}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$, $^{214}\text{Bi}/^{222}\text{Rn}$) sledujú rovnaký trend ako rovnovážny faktor F , s maximálnymi hodnotami v jesenných a zimných mesiacoch a minimálnymi v jarňých a letných mesiacoch. Keď zoberieme do úvahy údaje z analýzy denných vln EOAR, OAR a rovnovážneho faktora z 36 po sebe idúcich mesiacov (Obrázok 4) a porovnáme si ich priebehy, môžeme konštatovať, že priemerná denná vlna objemovej aktivity ^{222}Rn (C_{Rn}) vykazuje maximum o 5. hodine ($9,38 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) a minimum popoludní o 15. hodine ($6,36 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$). Ekvivalentná objemová aktivita ($C_{\text{eq,Rn}}$), ktorá vyjadruje lineárnu kombináciu objemových aktivít produktov premeny, vykazuje podobný priebeh s maximum o 7. hodine ($3,29 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) a minimum popoludní o 17. hodine ($2,26 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$). Rovnovážny faktor je dôležitý parameter, ktorý vystupuje vo

výpočte efektívnej dávky obyvateľstva od radónu v dôsledku inhalácie jeho krátko žijúcich produktov premeny. Priemerný denný priebeh vykazuje variáciu s maximom o 9. hodine ($F=0,41$) a minimom neskoro večer až skoro ráno ($F=0,33$). Priemerné denné vlny ^{218}Po , ^{214}Pb a ^{214}Bi majú podobný priebeh s maximom v skorých ranných hodinách a minimom popoludní.



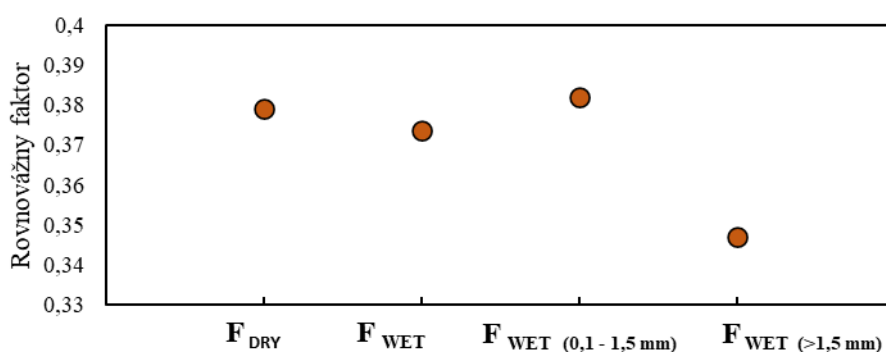
Obrázok 4 Stredný denný priebeh EOAR, OAR a F .

Podľa predpokladov, ktoré vychádzajú z práce Jacobiho a Andre [1962] je rovnováha medzi ^{222}Rn a jeho krátko žijúcimi produktmi premeny v prízemnej časti atmosféry závislá od turbulentného premiešavania. Zmiešavacie procesy sú okrem iných faktorov aj funkciou rýchlosti vetra. Ako je možné vidieť na Obrázku 5, EOAR a OAR najprv so zvyšujúcou sa rýchlosťou vetra, teda so zvyšujúcim sa premiešavaním, klesajú. OAR od 2 m.s^{-1} a EOAR od $2,5 \text{ m.s}^{-1}$ po vyššiu rýchlosť vetra zostávajú takmer konštantné. Pokles hodnôt OAR je oproti EOAR oveľa strmší. Konštantné hodnoty OAR a EOAR môžeme interpretovať zvýšenou mierou horizontálneho transportu. Zatiaľ čo transport radónu v atmosfére je spôsobený najmä turbulentnou difúziou, objemová aktivita produktov premeny je navyše ovplyvnená procesmi odstraňovania z atmosféry na zem, a to mokrou (dažďom) a v menšej miere suchou depozíciou [PORSTENDÖRFER, 1991]. Aby sme preskúmali do akej miery je ovplyvnený rovnovážny faktor atmosférickými zrážkami (dážď, sneh), stredné denné hodnoty F boli vypočítané vo všetkých dňoch so zrážkami (F_{WET}), v dňoch so zrážkami $0,1 - 1,5 \text{ mm}$ ($F_{WET (0,1 - 1,5 \text{ mm})}$) a v dňoch so zrážkami $> 1,5 \text{ mm}$ ($F_{WET (> 1,5 \text{ mm})}$). Ďalšia skupina bola s hodnotami F pozorovanými počas suchých dní (F_{DRY}).



Obrázok 5 EOAR, OAR a F v závislosti od rýchlosti vetra

Celkovo sme porovnali hodnoty rovnovážneho faktora s 9820 dvojhodinovými údajmi o úhrne zrážok v [mm]. Z toho 1088 bolo $> 0,1$, Obrázku 6. Z výsledkov možno usúdiť, že v priemere takmer rovnaké, no v skutočnosti o málo nižšie hodnoty F sú pozorované v dňoch s dažďom alebo snehom ($F_{WET} = 0,37$) v porovnaní s hodnotami F nameranými počas suchých dní ($F_{DRY} = 0,38$). Pri podrobnejšej analýze sme však zistili že $F_{WET (0,1 - 1,5 mm)} > F_{DRY} > F_{WET (> 1,5 mm)}$. Všeobecne platí že čím je vyšší úhrn zrážok, tým je nižší rovnovážny faktor. Úhrn zrážok $> 1,5$ mm bol počas pomerne dlhého sledovaného obdobia pomerne zriedkavý.



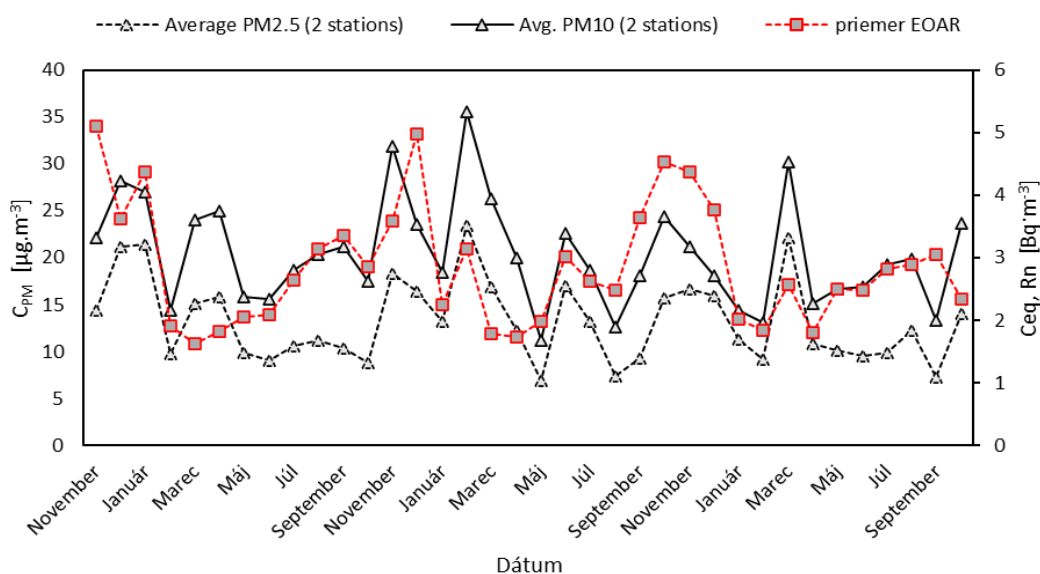
Obrázok 6 stredné hodnoty F , F_{DRY} , F_{WET} , $F_{WET (> 1,5 mm)}$ a $F_{WET (0,1 - 1,5 mm)}$.

Produkty premeny naviazané na prachové častice sú počas takýchto lejakov vymývané oveľa rýchlejšie v porovnaní s radónom. Rovnovážny faktor je teda nižší. Počas dažďa sa vzduch často zdvíha v dôsledku konvekčného stúpania (keď teplý vzduch stúpa) alebo zdvíhania (napr. keď teplý vzduch tlačí nahor studený front). Keď vzduch

stúpa, ochladzuje sa, čo vedie ku kondenzácii a prípadne k zrážkam. V podmienene nestabilných alebo neutrálnych podmienkach môže tento proces pokračovať a prispievať k trvalým zrážkam. Vo veľkej miere je tak podporený vertikálny transport radónu do atmosféry čo môže mať za následok $F_{WET(0,1-1,5\text{ mm})} > F_{DRY}$.

3.3 Vzťah medzi radónom, jeho produktami premeny, koncentráciou prachových častíc a meteorologickými parametrami

Pevné častice a aerosóly ovplyvňujúce kvalitu ovzdušia postihuje v atmosfére rovnaký osud ako produkty premeny radónu a rovnako aj radón. Koncentrácie látok znečisťujúcich ovzdušie (t.j. PM₁₀, PM_{2,5}) boli kontinuálne merané na staniách na Jeséniovej ulici a Trnavskom mýte v Bratislave oddelením kvality ovzdušia Slovenského hydrometeorologického ústavu (SHMÚ). Výsledky tohoto paralelného merania v atmosfére Bratislavy počas rokov 2020-2022 je zobrazené na Obrázku 7. Z priebehu stredných mesačných hodnôt je vidieť, že sú v dobrej zhode s priebehom EOAR čo znamená že rovnako ako produkty premeny, aj prachové častice sú závislé od intenzity vertikálneho premiešavania atmosféry. Korelačný faktor R pre všetky údaje z celého sledovaného obdobia má hodnotu 0,50 pre EOAR-PM₁₀ aj EOAR-PM_{2,5}.



Obrázok 7 Priebeh stredných mesačných hodnôt PM_{2,5}, PM₁₀ a EOAR

3.4 Výpočet rezidenčného času aerosólov

Z údajov o objemovej aktivite ²²²Rn boli urobené týždňové stredné hodnoty prislúchajúce času odberu filtrov, na ktorých sa merala objemová aktivita ²¹⁰Pb. Konštatovali sme, že priebeh ²¹⁴Pb a ²¹⁴Bi, respektíve EOAR je v dobrej zhode

s priebehom hodnôt ^{222}Rn . Rozpadová konštanta ^{210}Pb , ktorého $t_{1/2} = 22,3$ r bude $\lambda_R = 2,61 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. Keď zoberieme do úvahy stredný rovnovážny faktor ($F = 0,46$), strednú objemovú aktivitu ^{222}Rn ($6,98 \pm 1,64$) $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ a strednú objemovú aktivitu ^{210}Pb ($0,80 \pm 0,02$) $\text{mBq} \cdot \text{m}^{-3}$, stredná hodnota pomeru $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$ bude $1,15 \cdot 10^{-4}$. Dosadením do vzorca:

$$\tau = \frac{1}{\lambda_r} = \frac{A_{Pb}}{\lambda_{Pb} \cdot (F \cdot A_{Rn} - A_{Pb})} \quad (1.)$$

dostaneme rezidenčný čas $\tau_R = 3,0$ dňa, čo je v dobrom súlade s rezidenčným časom $\tau_R = 4,1$ dňa vypočítaným za obdobie rokov 2004-2013 v práci Sýkora a kol. [2017].

Tabuľka 1 Stredné mesačné hodnoty pomerov koncentrácií $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$, $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$, $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$ a pomocou nich vypočítaného rezidenčného času aerosólov a atmosfére.

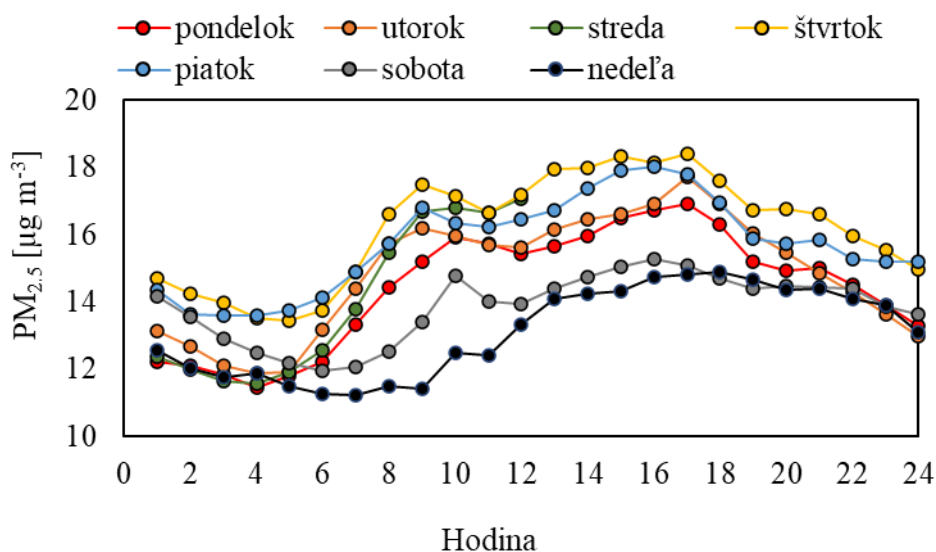
Mesiac	$^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$	τ [d]	$^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$	τ [d]	$^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$	τ [d]
Január	$2,01 \cdot 10^{-4}$	2,37	$2,43 \cdot 10^{-4}$	2,58	$1,01 \cdot 10^{-4}$	2,41
Február	$2,30 \cdot 10^{-4}$	2,7	$2,63 \cdot 10^{-4}$	3,09	$8,57 \cdot 10^{-5}$	2,71
Marec	$2,99 \cdot 10^{-4}$	3,52	$3,31 \cdot 10^{-4}$	3,89	$1,31 \cdot 10^{-4}$	3,51
Apríl	$2,58 \cdot 10^{-4}$	3,04	$2,83 \cdot 10^{-4}$	3,34	$1,11 \cdot 10^{-4}$	3,11
Máj	$2,90 \cdot 10^{-4}$	3,41	$2,93 \cdot 10^{-4}$	3,45	$9,96 \cdot 10^{-5}$	3,33
Jún	$2,61 \cdot 10^{-4}$	3,07	$2,88 \cdot 10^{-4}$	3,39	$1,12 \cdot 10^{-4}$	2,78
Júl	$2,72 \cdot 10^{-4}$	3,21	$2,94 \cdot 10^{-4}$	3,46	$1,04 \cdot 10^{-4}$	2,88
August	$2,88 \cdot 10^{-4}$	3,39	$3,21 \cdot 10^{-4}$	3,78	$1,15 \cdot 10^{-4}$	3,25
September	$3,46 \cdot 10^{-4}$	4,07	$3,93 \cdot 10^{-4}$	4,62	$1,56 \cdot 10^{-4}$	3,91
Október	$2,98 \cdot 10^{-4}$	3,51	$3,49 \cdot 10^{-4}$	4,1	$1,52 \cdot 10^{-4}$	3,18
November	$1,69 \cdot 10^{-4}$	1,99	$2,02 \cdot 10^{-4}$	2,38	$1,02 \cdot 10^{-4}$	1,94
December	$2,34 \cdot 10^{-4}$	2,75	$2,95 \cdot 10^{-4}$	2,9	$1,03 \cdot 10^{-4}$	2,84
Celé obdobie	$2,69 \cdot 10^{-4}$	3,17	$3,02 \cdot 10^{-4}$	3,5	$1,15 \cdot 10^{-4}$	3,05

Ako ďalšie boli vypočítané rezidenčné časy z pomeru ^{210}Pb a produktov premeny radónu ^{214}Pb a ^{214}Bi . Pre pomer $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$ bol vypočítaný rezidenčný čas $\tau_R = 3,17$ dňa; pre $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$ bol $T_R = 3,5$ dňa. Vypočítané pomery a rezidenčné časy uvedené v tabuľke 18 sú v dobrej vzájomnej zhode. Výsledky o rezidenčnom čase získané analýzou obdobia od novembra 2019 do októbra 2022 (Tabuľka 1) sú o čosi nižšie, no aj tak blízke hodnote akú namerl Sýkora a kol. počas obdobia rokov 2004 – 2013 ($T_R = 4,1$ d). Pre porovnanie sa môžeme pozrieť na výsledky dosiahnuté výpočtom doby zotrvania aerosólov

v atmosfére na základe pomeru ich aerodynamického priemeru (AMAD). Túto metódu zvolil Winkler a kol., [2001] a to v lokalite vzdialenej od Bratislavy len ~ 400 km a vypočítal $\tau_R = 4,5$ d.

3.5 Model pre výpočet prírastku antropogénnej zložky prachových častíc

S cieľom overiť dobu zotrvania aerosólov v atmosfére boli z údajov o koncentracii prachových častíc PM na meracej stanici Trnavské mýto zozbieraných počas rokov 2020-2022 určené stredné denné vlny pre jednotlivé dni týždňa (Obrázok 8). Tieto stredné denné vlny sa cez pracovné dni vyznačujú prudkým ranným nárastom koncentrácie od 4:00 do 9:00. Koncentrácie PM zotrvávajú na vysokých hodnotách až do neskorého popoludnia, kedy začne ich koncentrácia pozvoľne klesať. Cez víkend je v dôsledku utlmenia ľudských činností nárast koncentrácie PM oveľa miernejší. Nakoľko koncentrácie PM v sebe zahŕňajú prachové častice pochádzajúce zo všetkých zdrojov, teda prírodných aj antropogénnych, tento pokles má jasné prepojenie na činnosť človeka.



Obrázok 8 Stredné denné priebehy koncentrácie PM_{2.5} pre jednotlivé dni týždňa na meracej stanici Trnavské mýto. Využitie boli hodinové údaje o PM z rokov 2020-2022.

Časovú zmenu koncentrácie prachových častíc v atmosfére Bratislavy pre jednotlivé dni týždňa sme sa pokúsili popísať pomocou jednoduchého modelu, ktorý vychádza z predpokladu, že vymývanie prachových častíc z atmosféry za jednotku času je úmerné ich aktuálnej koncentrácii [TUREKIAN, 1977]. Jedná sa o ten istý predpoklad, ktorý je využitý pri odvodzovaní rezidenčného času aerosólov alebo zákona rádioaktívnej premeny. Matematicky sa dá vyjadriť nasledovnou diferenciálnou rovnicou:

$$\frac{dC}{dt} = -\lambda_R \cdot C, \quad (2.)$$

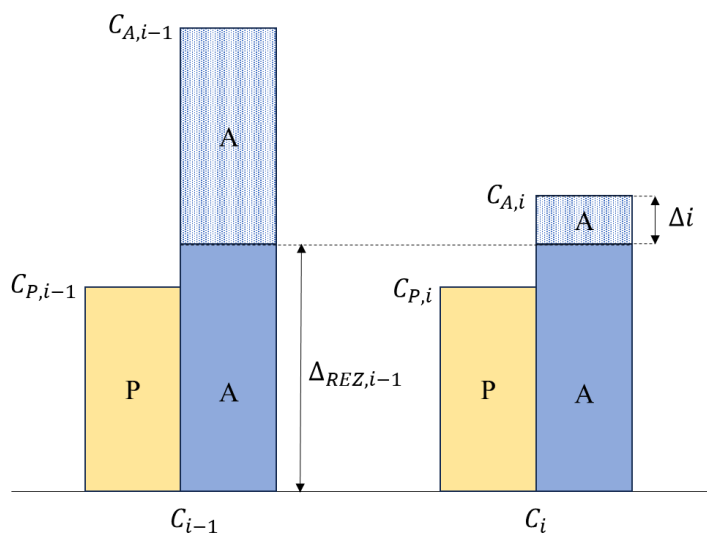
kde C = koncentrácia aerosólov v atmosfére v čase t , $\lambda_R = \frac{1}{\tau_R}$, τ_R = rezidenčný čas aerosólov v atmosfére.

Jej riešením je

$$C(t) = C_0 \cdot e^{-\lambda_R t}, \quad (3.)$$

kde C_0 = počiatočná koncentrácia aerosólov v atmosfére

Na nasledovnom Obrázku 9 je schematicky znázornený náš model pre prípad, že koncentrácia PM zo dňa na deň klesá (napr. z piatka na sobotu). Vo všeobecnosti platí, že koncentrácia PM je daná súčtom prírodnej zložky PM a antropogénnej zložky PM. Nakoľko náš model využíva priemerné hodnoty koncentrácie PM pre jednotlivé dni týždňa počas obdobia troch rokov, prírodný príspevok je možné počas týždňa považovať za konštantný (na obrázku ho reprezentuje žltý stĺpec „P“). Variabilita PM počas týždňa bude teda určená len variabilitou antropogénnej zložky PM, ktorej na obrázku prislúcha modrý stĺpec „A“.



Obrázok 9. Model 24-hodinovej zmeny koncentrácie prachových častíc PM v prípade, že koncentrácia PM zo dňa na deň klesá. P = prírodná zložka PM, A = antropogénna zložka PM.

Denná hodnota antropogénnej zložky C_{Ai} je súčtom denného prírastku antropogénnej zložky Δ_i a reziduálnej antropogénnej zložky z predchádzajúceho dňa $\Delta_{REZ, i-1}$:

$$C_{Ai} = \Delta_i + \Delta_{REZ, i-1}$$

(4.)

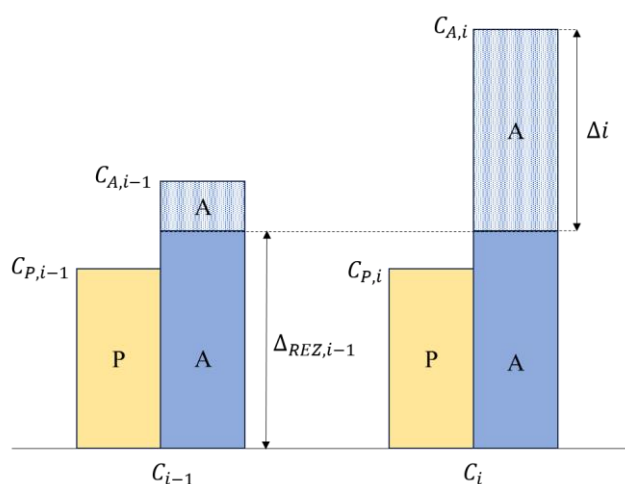
Reziduálna zložka sa dá podľa rovnice (2.) vyjadriť ako

$$\Delta_{REZ, i-1} = C_{A, i-1} \cdot e^{-\lambda_R t} \quad (5.)$$

Skombinovaním dvoch predchádzajúcich vzťahov dostávame pre denný prírastok antropogénnej zložky prachových častíc:

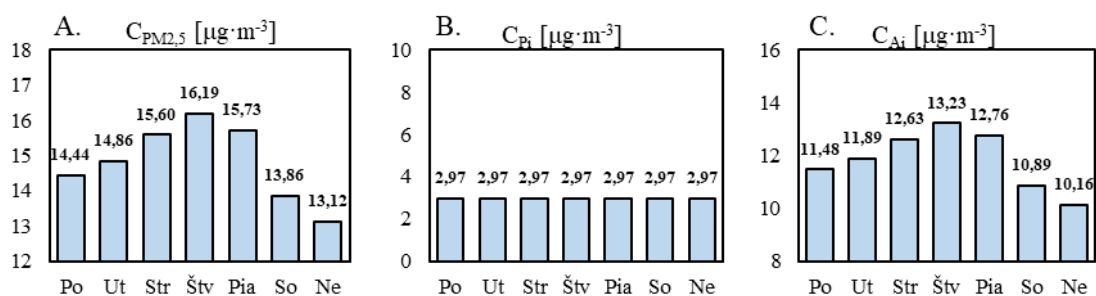
$$\Delta_i = C_{A, i} - C_{A, i-1} e^{-\lambda_R t} \quad (6.)$$

Analogickým spôsobom sa dá ukázať, že dva prechádzajúce vzťahy popisujú aj situáciu, kedy koncentrácia PM zo dňa na deň narastá, ako je schematicky znázornené na Obrázku 10.



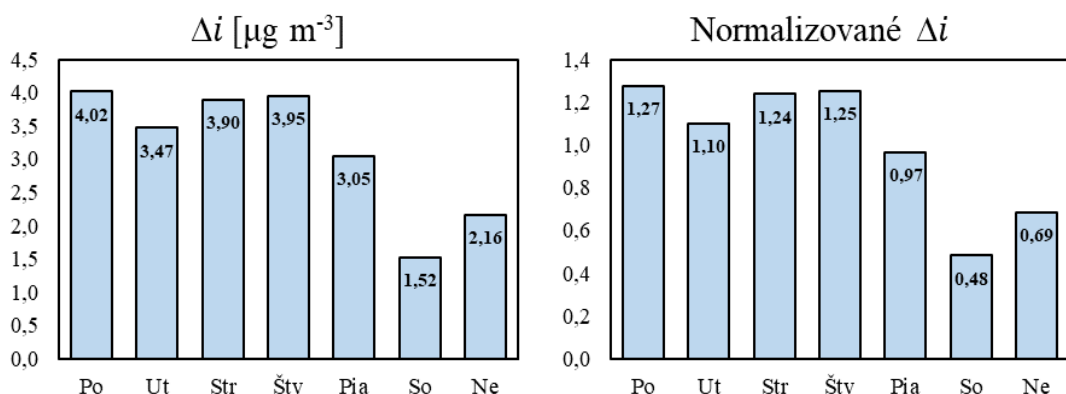
Obrázok 10. Model 24-hodinovej zmeny koncentrácie prachových častíc PM v prípade, že koncentrácia PM zo dňa na deň narastá. P = prírodná zložka PM, A = antropogénna zložka PM.

V tejto práci sme pomocou nášho modelu odhadli denný prírastok celkovej antropogénnej zložky prachových častíc PM_{2,5} na Trnavskom mýte, ktoré sa nachádza v centre mesta a patrí k najrušnejším lokalitám v Bratislave. Na Obrázku 11 vidíme denný priebeh antropogénnej a prírodnej zložky PM_{2,5} v priebehu týždňa. Stredná denná hodnota koncentrácie PM_{2,5} bola $C_i = 14,83 \text{ } [\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$. Táto hodnota je daná súčtom jej antropogénnej zložky $C_{A, i} = 11,86 \text{ } [\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$ a prírodnej zložky $C_{P, i} = 2,97 \text{ } [\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$ (pretože sme uvažovali, že celotýždňový pomer týchto dvoch zložiek PM je 80:20). V priebehu týždňa sa podiel antropogénnej zložky prachových častíc mení iba málo, v rozsahu od 77% v nedeľu do 82% vo štvrtok.



Obrázok 11 Celková koncentrácia PM_{2.5} v priebehu týždňa (A) sa dá rozložiť na príspevok antropogénnej zložky (B) a prírodnej zložky (C). Vstupné dáta pochádzajú z meracej stanice na Trnavskom mýte.

Následne bol pomocou vzťahu (6) určený denný prírastok antropogénnej zložky PM_{2.5}. Jeho priebeh je ukázaný na Obrázku 12, z ktorého vyplýva, že hodnota denného prírastku sa v priebehu týždňa výrazne mení. Oproti pracovným dňom dochádza cez víkend k poklesu o zhruba 50%.



Obrázok 12 Priemerný denný prírastok antropogénnej zložky prachových častíc PM_{2.5} na Trnavskom mýte. Na ľavom obrázku sú absolútne hodnoty PM, na obrázku napravo sú hodnoty PM normalizované vzhľadom na týždňový priemer.

Z obrázka je možné vypozaovať výrazný týždenný cyklus denného prírastku antropogénnej zložky Δ_i . Denné prírastky sú najvyššie od pondelka do štvrtka, v piatok dochádza k miernemu poklesu pravdepodobne preto, že ľudia vo väčšom využívajú prácu z domu, prípadne si naplánujú predĺžený víkend. V sobotu je prírastok Δ_i najmenší, nakoľko ľudia menej jazdia autami a trávajú viac času doma. V nedeľu dochádza v porovnaní zo sobotou k miernemu nárastu, pravdepodobne preto, že ľudia sa v závere víkendu vracajú do miest, kde pracujú. Hodnota nedeľného prírastku je však stále výrazne nižšia ako cez pracovné dni – napr. z nedele na pondelok dochádza podľa nášho modelu k nárastu o 86 %, pretože v pondelok ľudia hromadne cestujú do práce.

Náš model pre určovanie denného príspevku antropogénnych PM je v princípe možné využiť aj na väčšie prachové častice PM₁₀, pre tieto účely by ale bolo potrebné poznať ich rezidenčný čas v atmosfére. V tejto práci sme z pomeru ²¹⁰Pb a produktov premeny radónu vypočítali rezidenčný čas zložky prachových častíc < 2,5 μm. Rezidenčný čas zložky prachových častíc < 10 μm bude v skutočnosti kratší, pretože väčšie častice v dôsledku väčšej hmotnosti rýchlejšie klesajú smerom nadol. Nakoľko ale jeho presnú hodnotu nepoznáme, model sme zatiaľ využili len pre jemné prachové častice PM_{2,5}.

4. Literatúra použitá v autoreferát

GARZON, L., JUANCO, J.M., PEREZ, J.M., FERNANDEZ, J.M., ARGANZA, B., 1986. The universal Rn wave. An approach. *Health Phys.* 51 (2), 185–195.

MINATO, Susumu. Seasonal variations in radon concentrations in the lower atmosphere at Nagoya. *Nagoya Kogyo Gijutsu Shikenjo Hokoku*, 1988, 37.9-10: 233-240.

PORSTENDÖRFER, J.; BUTTERWECK, G.; REINEKING, A. Diurnal variation of the concentrations of radon and its short-lived daughters in the atmosphere near the ground. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1991, 25.3-4: 709-713.

POVINEC, P. (ed). 1992. Investigation of radionuclide variations in the Bratislava air. In: *Rare Nuclear Processes. Proceedings of the 14th Europhysics conference on nuclear physics*. Singapore: World Scientific, 441 p.

SÝKORA, Ivan, et al. Long-term variations of radionuclides in the Bratislava air. *Journal of environmental radioactivity*, 2017, 166: 27-35.

TUREKIAN, K.K., GRAUSTEIN W.C. Natural Radionuclides in the Atmosphere. In KEELING, R.F., *Treatise on Geochemistry*. vol. 4. Elsevier, 2003. p. 261 – 279. ISBN 0-08-043751-6.

WINKLER, RANCE & RUCKERBAUER, F & TRAUTMANNSEIMER, M & TSCHIRSCH, J & KARG, E. (2001). Diurnal and seasonal variation of the equilibrium state between short-lived radon decay products and radon gas in ground-level air. *Radiation and environmental biophysics*. 40. 115-23. 10.1007/s004110100096.

5. Zoznam publikácií doktoranda

AFD_001 Helej, Markus, Holý, Karol, Bulko, Martin, Müllerová, Monika. Vývoj kontinuálnych monitorov radónu pre štúdium atmosférických procesov. SIGN-UKO MF18-0401 In: 19. Štiavnické dni 2018. Banská Štiavnica: Združenie pre reguláciu rizika z radónu, 2018, s. 199-204 [tlačaná forma]. ISBN 978-80-971754-4-3. [slovenčina]

AFD_002 Helej, Markus, Holý, Karol, Bulko, Martin, Müllerová, Monika, Masarik, Jozef, Böhm, Radoslav. Vplyv meteorologických podmienok na koncentráciu radónu a jeho rozpadových produktov v atmosfére = Influence of meteorological factors on activity concentrations of radon and short-lived radon decay products in the atmosphere. SIGN-UKO MF19-0385 In: 20. Štiavnické dni 2019: zborník recenzovaných príspevkov. Bratislava: Univerzita Komenského v Bratislave, 2019, s. 212-219 [tlačaná forma]. ISBN 978-80-223-4795-2.

https://fns.uniba.sk/fileadmin/prif/chem/kjd/XX._SD_2019_ZBORNIK_Prispevkov.pdf. [slovenčina]

AFD_003 Helej, Markus. Krátkožijúce rozpadové produkty radónu v atmosfére a ich správanie sa. SIGN-UKO MF19-0754 In: Študentská vedecká konferencia FMFI UK, Bratislava 2019: Zborník príspevkov. Bratislava: Univerzita Komenského v Bratislave. Fakulta matematiky, fyziky a informatiky UK, 2019, s. 64-70 [tlačaná forma] [online]. ISBN 9788081470936. <http://compbio.fmph.uniba.sk/svk2019/svk2019-zbornik.pdf>. [slovenčina]

AFG_001 Holý, Karol, Helej, Markus, Müllerová, Monika, Bulko, Martin, Böhm, Radoslav. Štúdium správania sa ^{222}Rn a jeho produktov premeny vo vonkajšej atmosfére. SIGN-UKO MF18-0768 In: 40. Dny radiační ochrany: sborník abstraktů. Praha: České vysoké učení technické v Praze, 2018, s. 82-82 [online]. ISBN 978-80-01-06504-4. <https://csoz.suro.cz/publikace/dro/dro-2018-mikulov/view>. [slovenčina]

AFG_002 Holý, Karol, Müllerová, Monika, Helej, Markus, Eckertová, Terézia, Bulko, Martin, Sýkora, Ivan, Kontuľ, Ivan, Masarik, Jozef, Böhm, Radoslav. Mnohokomponentné analýzy pôdy a atmosféry a ich aplikácie. SIGN-UKO MF21-0719 In: 42. Dny radiační ochrany: sborník abstraktů. Praha: České vysoké učení technické v

Praze, 2021, s. 94-94 [tlačaná forma] [online]. ISBN 978-80-01-06915-8.
<https://indico.ujf.cas.cz/event/2/contributions/105/contribution.pdf>. [slovenčina]

AFH_001 Holý, Karol, Helej, Markus, Moravcsík, Attila, Müllerová, Monika, Bulko, Martin. Detekčné systémy pre kontinuálne monitorovanie ^{222}Rn a jeho krátkožijúcich produktov premeny v atmosfére. SIGN-UKO MF17-000434 In: 39. dni radiačnej ochrany: Zborník abstraktov. Bratislava: Slovenská zdravotnícka univerzita v Bratislave, 2017, s. 88-88 [tlačaná forma]. ISBN 978-80-89702-40-4. [slovenčina]

6. Záver

Predložená práca sa zaoberá atmosférickým radónom, jeho produktami premeny a ich meraním. Zároveň podporuje a rozširuje naše poznatky o správaní sa prachových častíc obsiahnutých v atmosférických aerosóloch. V práci sú postupne opísané správanie sa radónu v atmosfére, metódy merania radónu a ďalšie príklady využitia radónu pre charakterizovanie stavu atmosféry a správania sa aerosólov v atmosfére.

V práci sú detailne opísané metódy, ktoré sú na KJFB UK využívané na monitorovanie radónu, respektíve jeho produktov premeny vo vonkajšej atmosfére. Súčasný stav je taký, že na kontinuálne monitorovanie ^{222}Rn vo vonkajšej atmosfére sa používa veľkoobjemová scintilačná komora s objemom 4,5 l (LSCH) umiestnená v laboratóriu na KJFB FMFI UK, a pre simultánnu kontrolu objemových aktivít sa využíva scintilačná komora s objemom 1 l (SK1L) umiestnená vo vysunutom laboratóriu v areáli meteorologických pozorovaní na FMFI UK.

Kontinuálne meranie objemovej aktivity radónu (OAR) bolo realizované počas celého obdobia sledovaného v tejto práci (36 mesiacov). Porovnanie nameraných priebehov OAR v areáli FMFI UK pomocou SK1L a LSCH vykazuje počas sledovaného obdobia dobrú zhodu ($R^2 = 0,56$). Oba detektory pružne reagujú na zmeny OAR vo vonkajšej atmosfére.

Postavený spektrometrický monitor rozpadových produktov ^{222}Rn využíva pre detekciu produktov premeny ^{222}Rn zachytených na filtri kremíkový detektor. Tento monitor pracoval paralelne s monitorom ^{222}Rn a na základe získaných údajov bolo možné získať informácie o pomeroch $^{218}\text{Po}/^{222}\text{Rn}$, $^{214}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$, $^{214}\text{Bi}/^{222}\text{Rn}$ a $^{214}\text{Po}/^{222}\text{Rn}$ v atmosfére.

Pri testovaní detekčných systémov vo vnútornej atmosfére bola konštatovaná dobrá zhoda v porovnávacích meraniach OAR aj EOAR. Súbežne s testovaním vo

vnútornej atmosfére prebiehala výstavba laboratória v areáli meteorologických pozorovaní na FMFI UK. Do tohto laboratória bol inštalovaný monitor produktov premeny radónu a tiež scintilačná komora s objemom 1 ℓ, čím bolo zahájené meranie vo vonkajšej atmosfére. Vďaka tomu prebiehalo na FMFI UK kontinuálne meranie rádioaktivity atmosféry pomocou troch detektorov. Počas celého merania boli namerané stredné mesačné hodnoty objemovej aktivity ^{218}Po $2,82\pm 0,43$ [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$], ^{214}Pb $3,28\pm 0,61$ [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$] a ^{214}Bi $2,78\pm 0,47$ [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]. Z nameraných výsledkov o objemovej aktivite produktov premeny radónu bola vypočítaná ekvivalentná objemová aktivita radónu (EOAR), čo je dôležitý parameter pre výpočet rovnovážneho faktora. Stredná hodnota rovnovážneho faktora F počas celého obdobia bola $F = 0,38$ čo je v dobrej zhode s výsledkami UNSCEAR [2000], ktorý hovorí o typických hodnotách rovnovážneho faktora vo vonkajšej atmosfére 0,5 až 0,7 s rozpätím 0,2 až 1,0.

Produkty premeny radónu sú jednou z mnohých zložiek, ktorou je tvorený atmosférický aerosól. V práci boli analyzované a porovnané kontinuálne merania koncentrácie prachových častíc (PM_{10} , $\text{PM}_{2,5}$), namerané na meracích staniciach SHMÚ na Jeséniovej ulici a Trnavskom mýte v Bratislave. Výsledky paralelného merania koncentrácie prachových častíc v Bratislave sú v dobrej zhode s priebehom EOAR a počas 36 mesiacov vykazujú podobné trendy. Pri analýze denných vln PM bol pozorovaný trend vyšších koncentrácií PM počas pracovného týždňa oproti nižšej koncentracii prachových častíc cez víkend. Konštatovali sme, že koncentrácia prachových častíc v atmosfére je priamo spätá s činnosťou človeka.

Transport produktov premeny radónu v atmosfére súvisí s transportom aerosólov. Nakoľko sa produkty premeny radónu krátko po svojom vzniku viažu na aerosóly, z atmosféry sú odstraňované suchou alebo mokrou depozíciou. V práci bol sledovaný efekt ich odstraňovania spôsobený vetrom a zrážkami. Potvrdilo sa, že so zvyšujúcou sa rýchlosťou vetra, teda so zvyšujúcim sa premiešavaním hodnoty OAR, EOAR aj PM klesajú. Pokles hodnôt OAR je oproti EOAR a PM strmší. Vplyv rýchlosti vetra na odstraňovanie prachových častíc PM je pozorovateľný najmä v oblasti rýchlosti vetra vyššej ako $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ s poklesom viac ako 30%. U EOAR dochádza k poklesu až o 50%.

Proces tzv. mokrej depozície, teda odstraňovania prachových častíc z atmosféry zrážkami bol jasne pozorovaný v prípadoch intenzívnych zrážok. Všeobecne platilo, že so zvyšujúcim sa úhrnom zrážok koncentrácia prachových častíc klesala. Z našich analýz

tiež vyplýva, že v čase pretrvávajúcich daždivých podmienok prevláda odnášanie radónu vertikálnym transportom nad vymývaním prachových častíc z atmosféry.

V ďalšej časti práce boli z nameraných experimentálnych údajov urobené týždňové stredné hodnoty objemových aktivít ^{222}Rn a jeho krátkožijúcich produktov premeny tak, aby zodpovedali času odberu na filter, na ktorom sa merala objemová aktivita ^{210}Pb . Priebehy objemových aktivít ^{222}Rn a jeho krátkožijúcich produktov premeny boli v dobrej zhode s pribehmi koncentrácie ^{210}Pb . Z pomeru ^{210}Pb , ^{222}Rn a produktov premeny radónu ^{214}Pb a ^{214}Bi boli vypočítané rezidenčné časy rádioaktívnych aerosólov v atmosfére, so strednou hodnotou $\tau_R = 3,24$ dňa. Rezidenčný čas charakterizuje typickú dobu zotrvania aerosólov v atmosfére, od ich vstupu do atmosféry až po ich odstránenie. Atmosférický aerosól predstavuje sumu častíc a kvapôčok rôznej veľkosti voľne rozptýlených v ovzduší. Práve veľkosť prachových častíc tvoriacich aerosól má dominantný vplyv na dobu ich zotrvania v atmosfére. Z prehľadu použitej literatúry bolo zistené, že veľká časť aktivity ^{210}Pb a produktov premeny radónu je obsiahnutá v jemnej aerosólovej frakcii so stredným aerodynamickým priemerom do 1 μm . Z tohto dôvodu je rezidenčný čas vypočítaný v tejto práci na základe produktov premeny radónu reprezentatívnejší pre prachové častice $\text{PM}_{2,5}$ než pre PM_{10} .

Posledná časť práce sa venovala aplikovaniu našich experimentálnych a teoretických poznatkov. Bol predstavený model pre odhad denného príspevku antropogénneho PM v Bratislave. Z tohto modelu vypláva, že denný príspevok antropogénneho PM je cez víkend na úrovni cca 50% v porovnaní s pracovnými dňami. Ukázalo sa tiež, že normalizovaný týždňový priebeh denného prírastku antropogénnej zložky prachových častíc $\text{PM}_{2,5}$ je v dobrej zhode s nezávislým odhadom publikovaným v literatúre.

Koncentrácia prachových častíc $\text{PM}_{2,5}$ obsahuje komplexnú zmes komponentov, ktoré majú rôzne chemické a fyzikálne vlastnosti. Výskum koncentrácie PM a interpretácia výsledkov vo vzťahu k zdravotnému riziku je preto tým komplikovanejšia, čím vyššia je heterogenita aerosólovej zmesi. Rôzne zložky prachových častíc môžu byť relevantné pre rôzne účinky na zdravie. Podľa Regionálneho úradu WHO pre Európu rastie mortalita lineárne so zvyšujúcou sa koncentráciou $\text{PM}_{2,5}$ o ~ 1% pre každých 10 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Poznatky o správaní sa atmosférických aerosólov, radónu a jeho produktov premeny a výsledky meraní predložené v tejto práci pomáhajú pochopiť procesy ich odstraňovania z atmosféry a lepšie zhodnotiť ich vplyv na zdravie človeka.