

**UNIVERZITA KOMENSKÉHO V BRATISLAVE**  
**FAKULTA MATEMATIKY, FYZIKY A INFORMATIKY**  
**KATEDRA JADROVEJ FYZIKY A BIOFYZIKY**



ŠTUDIJNÝ PROGRAM – JADROVÁ A SUBJADROVÁ FYZIKA

**KONTINUÁLNE METÓDY MERANIA IZOTOPOV**  
**RADÓNU A ICH APLIKÁCIE**

Dizertačná práca

Doktorand: Mgr. Markus Helej

Študijný program: 1160 13. Jadrová a subjadrová fyzika

Katedra: Katedra Jadrovej a subjadrovej fyziky

Školiteľ: prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc. doc. RNDr. Karol Holý, CSc

Bratislava, 2024



## Čestné vyhlásenie

Čestne vyhlasujem, že som túto dizertačnú prácu spracoval samostatne pod odborným vedením doc. RNDr. Holého, CSc. a prof. RNDr. Masarika, DrSc. a že som všetky použité zdroje na príslušných miestach uviedol.

Bratislava, máj 2024

.....

Podpis



## Pod'akovanie

Rád by som sa poďakoval doc. RNDr. Holému, CSc. za jeho odborné vedenie a podporu počas štúdia a pri písaní dizertačnej práce.

Druhé špeciálne poďakovanie patrí RNDr. Martinovi Bulkovi, PhD. za všetky cenné rady a inšpirujúce rozhovory na odborné a často aj tie menej odborné veselé témy.

Ďakujem aj prof. RNDr. Jozefovi Masarikovi, DrSc. za to že ma vzal ako svojho študenta.

Svojím kolegom, RNDr. Monike Müllerovej, PhD. a RNDr. Terézii Ekertovej, PhD. a Alemovi Sultanimu ďakujem za to že tvorili vynikajúci kolektív radónového tímu na FMFI UK.

V neposlednom rade by som chcel poďakovať svojim rodičom a milujúcej manželke, ktorí mi počas celého štúdia poskytovali všestrannú podporu a zázemie.

Bratislava, máj 2024

.....

Podpis



## Abstrakt

HELEJ, MARKUS. Kontinuálne metódy merania izotopov radónu v atmosfére a ich aplikácie [dizertačná práca]. Univerzita Komenského v Bratislave. Fakulta matematiky, fyziky a informatiky; Katedra jadrovej fyziky a biofyziky. Školiteľ: RNDr. Jozef Masarik, DrSc., doc. RNDr. Karol Holý, CSc. Komisia pre obhajoby: Jadrová a subjadrová fyzika, Predseda komisie: RNDr. Jozef Masarik, DrSc.,. Stupeň odbornej kvalifikácie: Doktor filozofie. Bratislava : FMFI UK, 2024. 127 s.

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  $^{210}\text{Pb}$ , radónu a produktov premeny radónu ( $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$ ). 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 poslúžil na odhad denného antropogénneho príspevku ku koncentrácii  $\text{PM}_{2,5}$  v atmosfére Bratislavy.

**Kľúčové slová:**  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  a  $^{214}\text{Pb}$ , metódy merania radónu, vonkajšia atmosféra, aerosóly,  $\text{PM}_{2,5}$ ,  $\text{PM}_{10}$  rezidenčný čas, emisie, prachové častice





## Abstract

HELEJ, MARKUS. Continuous methods of measuring radon isotopes in the atmosphere and their application [dissertation thesis]. Comenius University Bratislava. Faculty of mathematics, physics and informatics; Department of nuclear physics and biophysics. Supervisor: prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc., doc. RNDr. Karol Holý, CSc. Defence committee: Nuclear and subnuclear physics, Head of the committee: prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc. Graduate degree: Phd in nuclear and subnuclear physics. Bratislava : FMPI CU, 2024. 127 s.

The presented work deals with the measurement and study of the behavior of radon and its transformation products. It also supports and expands our knowledge about the behavior of dust particles contained in atmospheric aerosols. The work analyzes in detail the results from continuously recorded data on the volume activity of radon and equivalent volume activity from the years 2019 to 2022, spanning 36 consecutive months. By monitoring the behavior of the equilibrium factor  $F$ , it was found that the process of removing dust particles by wet and dry deposition exceeds the removal of radon by vertical transport into the atmosphere, but there are cases when this effect is suppressed under conditions of increased vertical mixing in the atmosphere. The residence time of atmospheric aerosol particles is a function of their removal from the atmosphere due to dry processes (diffusion, sedimentation, and resuspension) and wet deposition (precipitation). In this work, the estimation of the residence time of aerosols in the atmosphere was based on measurements of the activities of  $^{210}\text{Pb}$ , radon, and radon transformation products ( $^{214}\text{Pb}$  and  $^{214}\text{Bi}$ ). When analyzing the daily fluctuations in the concentration of PM dust particles, it was found that they are higher on weekdays than on weekends. The temporal changes in the concentration of dust particles in the atmosphere of Bratislava for individual days of the week were described using a simple model, which was employed to estimate the daily anthropogenic contribution to the concentration of  $\text{PM}_{2,5}$  in the atmosphere of Bratislava.

**Keywords:**  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  a  $^{214}\text{Pb}$ , radon measurement methods, outdoor atmosphere, aerosole,  $\text{PM}_{2,5}$ ,  $\text{PM}_{10}$  residence time, emission, dust particles

## Predhovor

Štúdium správania sa rádioaerosólov a koncentrácie prachových častíc PM vo vzťahu ku zdravotnému riziku je komplikovaný proces. V tejto práci bol skúmaný atmosférický radón a jeho produkty premeny. Ich správanie sa, rozptylové podmienky a metodológia merania. Výsledky predložené v tejto práci sú výsledkom analýzy dynamiky správania sa radónu a jeho produktov premeny v atmosfére a objasňujú vplyv odstraňovacích procesov a bližšie charakterizuje meteorologické podmienky v atmosfére. Naše zistenia predstavujú komplexný prehľad o meraní objemových aktivít radónu a jeho produktov premeny, vďaka čomu bol urobený výpočet základných parametrov, akými sú ekvivalentná objemová aktivita a rovnovážny faktor. Namerané údaje boli použité pre výpočet dobi zotrvania aerosólov v atmosfére. Rezi denčný čas aerosólov vypočítaný v tejto práci ponúka presnejší odhad týkajúci sa zotrvania jemnej zložky aerosólových frakcií v atmosfére. Dosadením rezidenčného času do modelu predstaveného v tejto práci bol zistený stredný denný antropogénny príspevok prachových častíc PM<sub>2,5</sub>.



# Obsah

Abstrakt .....	v
Abstract.....	vii
Predhovor .....	viii
1. Úvod .....	1
1. Prehľad súčasného stavu problematiky .....	3
2.1. Fyzikálne a chemické vlastnosti radónu .....	3
2.2. Zdroje radónu .....	6
2.3. Metódy merania radónu .....	10
2.3.1. Stopové detektory v pevnej fáze.....	11
2.3.2. Elektrety.....	11
2.3.3. Scintilačné komory .....	12
2.3.4. Adsorpcia radónu na aktívneho uhlie .....	12
2.3.5. Ionizačné komory .....	12
2.3.6. Kontinuálne metódy merania radónu.....	13
2.4. Využitie Radónu pre štúdium atmosféry.....	15
2.4.1. Vertikálna a priestorová distribúcia radónu.....	15
2.4.2. Variácie radónu v atmosfére .....	17
2.4.3. Aerosóly a produkty premeny radónu v atmosfére.....	19
2.5 Aplikácie meraní radónu a jeho produktov premeny v atmosfére .....	26
2.5.1. Určovanie stability atmosféry .....	26
2.5.2. Určovanie ekvivalentnej zmiešavacej výšky .....	31
2.5.3. Rovnovážny faktor.....	37
2.5.4. Rezidenčný čas aerosólov .....	40
3. Ciele dizertačnej práce .....	45
4. Experimentálne metódy .....	46
4.1 Detekčné systémy pre meranie OAR na báze scintilačných komôr .....	46
4.2. Detekčné systémy pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu .....	51
5. Výsledky a diskusia.....	57
5.1. Testovanie vo vnútornej atmosfére .....	57
5.1.1. Testovanie efektu hadice pri odbere vzoriek .....	61
5.1.2. Porovnanie detekčných systémov pre meranie radónu vo vnútornej atmosfére .....	65

5.2. Merania vo vonkajšej atmosfére .....	66
5.2.1. Porovnanie kontinuálnych detektorov radónu na báze scintilačných komôr	66
5.2.2. Meranie produktov premeny vo vonkajšej atmosfére.....	72
5.2.4. Vzťah medzi radónom, jeho produktami premeny, koncentráciou prachových častíc a meteorologickými parametrami .....	94
5.3. Výpočet rezidenčného času aerosólov .....	99
5.3.1. Využitie rezidenčného času aerosólov pre odhad denného príspevku antropogénneho PM v Bratislave.....	102
6. Záver.....	110
Použitá literatúra.....	114

## Zoznam obrázkov

Obrázok 1 Premenové rady $^{222}\text{Rn}$ (vľavo) a $^{220}\text{Rn}$ (vpravo) [BASKARAN, 2016].....	4
Obrázok 2 Mechanizmus prenikania radónu do atmosféry [BASKARAN, 2016] .....	8
Obrázok 3 Schéma časových stredných denných koncentrácií radónu [PORSTENDÖRFER a kol., 1998]. .....	17
Obrázok 4 Formovanie rádioaerosólov [PORSTENDÖRFER, 1979] .....	23
Obrázok 5 Model rozptylu dymovej sviečky, kde $x, y$ a $z$ sú súradnice, $H_s$ je výška výpuste, $H_e$ je efektívna výška výpuste, pre ktorú platí že: $H_e = H_s + \Delta_h$ , kde $\Delta_h$ je stúpanie oblaku. $W$ je rýchlosť vetra [KHLAIFI, 2009]. .....	26
Obrázok 6 Priebeh hodnôt disperzných koeficientov $\sigma_y$ a $\sigma_z$ v závislosti od triedy stability [Pasquill, 1974]. .....	28
Obrázok 7 Vzťah medzi gradientom teploty a EZV [HEMOND a FECHNER, 2015] . .....	32
Obrázok 8 Nárast objemovej aktivity produktov premeny radónu v uzavretej komore .....	47
Obrázok 9 Schéma kontinuálneho monitora radónu na báze scintilačnej komory.....	48
Obrázok 10 Schéma aparatury na meranie objemových aktivít produktov premeny radónu. ....	51
Obrázok 11 Príklad $\alpha$ spektra produktov premeny radónu.....	55
Obrázok 12 Detekčný systém pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu AlphaPM [Zdroj: <a href="http://www.bertin-technologies.com/">www.bertin-technologies.com/</a> ]. .....	57
Obrázok 13 Priebeh objemovej aktivity radónu a priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity v laboratóriu F1 256 v období 12.08.2019 do 07.10.2019 .....	58
Obrázok 14 Frekvenčné rozdelenie ekvivalentnej objemovej aktivity radónu z AlphaPM a nášho detekčného systému zo všetkých hodnôt v období 12.08. – 07.10.2019. ....	59
Obrázok 15 Priebehy rovnovážnych faktorov $F$ v laboratóriu F1 256 v období 12.08.2019 do 07.10.2019. ....	60

Obrázok 16 Priemerný denné priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity z AlphaPM a nášho detekčného systému zo všetkých hodnôt v období 12.08. – 07.10.2019. ....	60
Obrázok 17 Priemerný denný priebeh rovnovážneho faktora $F$ z AlphaPM a nášho detekčného systému zo všetkých hodnôt v období 12.08. – 07.10.2019.....	61
Obrázok 18 Priebehy objemovej aktivity radónu a ekvivalentnej objemovej aktivity v laboratóriu F1 256 v období 16.1.2019 do 7.2.2019. ....	62
Obrázok 19 Priemerný denné priebeh objemovej aktivity produktov premeny počas merania s pripojenou hadicou.....	64
Obrázok 20 Priemerný denné priebeh objemovej aktivity produktov premeny počas merania bez hadice. ....	64
Obrázok 21 Priebehy objemovej aktivity radónu namerané pomocou SK1L, LSCH a dvoch jednotiek AlphaGUARD v laboratóriu F1 256 v období 17.07.2018 do 31.07.2018. ....	66
Obrázok 22 Snímok areálu FMFI UK [Zdroj: <a href="https://www.google.com/maps">https://www.google.com/maps</a> ]. ....	67
Obrázok 23 Priebeh objemovej aktivity radónu LSCH a SK1L v roku 2018. ....	68
Obrázok 24 Stredná denná vlna OAR z LSCH a SK1L. Označené krúžkom sú 2 hodinové údaje, čiarou je označený 24 hodinový priebeh nafitovaný podľa Garzona [1986]. ....	68
Obrázok 25 Sezónne variácie na dvoch meracích miestach na FMFI UK.....	69
Obrázok 26 Priebeh strednej objemovej aktivity radónu z dát z dvoch scintilačných komôr (čierna) a ekvivalentnej objemovej aktivity radónu (červená) po uvedení do prevádzky v roku 2019. ....	73
Obrázok 27 Stredné denné priebehy ekvivalentnej objemovej aktivity radónu pre jednotlivé mesiace rokov 2019 – 2022.....	74
Obrázok 28 Stredné mesačné hodnoty ekvivalentnej objemovej aktivity za obdobie rokov 2019-2022. ....	75
Obrázok 29 Priemerné denné priebehy ekvivalentnej objemovej aktivity pre jednotlivé mesiace za obdobie rokov 2019-2022. ....	75
Obrázok 30 Ročný priebeh amplitúd ekvivalentnej objemovej aktivity. ....	76
Obrázok 31 Denný priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity radónu (označený červenou prerušovanou čiarou a štvorcom), objemovej aktivity $^{218}\text{Po}$ (označený prerušovanou čiernou čiarou a hviezdíčkom), objemovej aktivity $^{214}\text{Pb}$ (označený plnou čiernou čiarou a kosoštvorcom) a $^{214}\text{Bi}$ (označený plnou čiarou a krúžkom) počas rokov 2019-2022. ....	76
Obrázok 32 Priemerný denný priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity počas zimy, jari, leta a jesene za obdobie rokov 2019-2022. ....	77
Obrázok 33 Priebeh stredných denných vln rovnovážneho faktora $F$ zo všetkých hodnôt počas rokov 2019 – 2022.....	80
Obrázok 34 Frekvenčné rozdelenie hodnôt rovnovážneho faktora $F$ určené zo všetkých hodnôt počas rokov 2019 – 2022.....	81
Obrázok 35 Stredné mesačné hodnoty rovnovážneho faktora $F$ za obdobie rokov 2019-2022.....	81
Obrázok 36 Priemerné hodnoty rovnovážneho faktora $F$ pre jednotlivé mesiace za obdobie rokov 2019-2022.....	82

Obrázok 37 Stredný denný priebeh rovnovážneho faktora $F$ , $F_1$ , $F_2$ a $F_3$ za obdobie rokov 2019-2022. ....	83
Obrázok 38 Stredný denný priebeh rovnovážneho faktora $F$ počas zimných, jarných, letných a jesenných mesiacov za obdobie rokov 2019-2022. ....	84
Obrázok 39 Stredný denný priebeh EOAR, OAR a $F$ .....	86
Obrázok 40 EOAR, OAR a $F$ v závislosti od rýchlosti vetra.....	87
Obrázok 41 stredné hodnoty $F$ , $F_{DRY}$ , $F_{WET}$ , $F_{WET(> 1,5 mm)}$ a $F_{WET(0,1 - 1,5 mm)}$ .....	89
Obrázok 42 Priebeh stredných mesačných hodnôt PM <sub>2,5</sub> , PM <sub>10</sub> a EOAR .....	90
Obrázok 43 Stredný denný priebeh (A) PM <sub>10</sub> ; (B) PM <sub>2,5</sub> a EOAR počas pracovného týždňa a počas víkendu.....	91
Obrázok 44 Priebeh stredných mesačných hodnôt PM <sub>2,5</sub> , PM <sub>10</sub> a EOAR. ....	92
Obrázok 45 EOAR, PM <sub>2,5</sub> a PM <sub>10</sub> v závislosti od rýchlosti vetra. ....	93
Obrázok 46 Smerové rozloženie rýchlosti vetra a EOAR.....	95
Obrázok 47 Stredné mesačné hodnoty rýchlosti vetra, úhrnu zrážok a EOAR pre celé sledované obdobie medzi rokmi 2019 – 2022.....	96
Obrázok 48 Stredný denný priebeh EOAR a (A) teploty; (B) rýchlosti vetra; (C) relatívnej vlhkosti a za celé sledované obdobie 36 mesiacov. ....	97
Obrázok 49 Stredné mesačné hodnoty objemovej aktivity <sup>210</sup> Pb a <sup>222</sup> Rn za obdobie rokov 2019-2022. ....	99
Obrázok 50 Stredné denné priebehy koncentrácie (a) PM <sub>10</sub> , (b) PM <sub>2,5</sub> pre jednotlivé dni týždňa na meracej stanici Trnavské mýto. Využité boli hodinové údaje o PM z rokov 2020-2022.....	102
Obrázok 51 Priemerná koncentrácia PM <sub>2,5</sub> a PM <sub>10</sub> pre jednotlivé dni týždňa na meracej stanici Trnavské mýto.....	103
Obrázok 52. 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. ....	105
Obrázok 53. 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. ....	106
Obrázok 54 Celková koncentrácia PM <sub>2.5</sub> 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. ....	108
Obrázok 55 Priemerný denný prírastok antropogénnej zložky prachových častíc PM <sub>2.5</sub> na Trnavskom mýte. Na ľavom obrázku sú absolútne hodnoty PM, na obrázku napravo sú hodnoty PM normalizované vzhľadom na týždňový priemer. ....	108

## Zoznam tabuliek

Tabuľka 1 Prehľad metód merania radónu.....	10
Tabuľka 2 Pasquillova klasifikácia stupňov stability [Pasquill, 1961] .....	29
Tabuľka 3 Kategórie stability atmosféry podľa Pasquilla [PASQUILL, 1961].....	30

Tabuľka 4 Invertujúce koeficienty vypočítané pri kalibrácii Ward-Borakovou metódou .....	50
Tabuľka 5 Parametre elektronickej trasy .....	52
Tabuľka 6 Priemerné, minimálne a maximálne hodnoty objemovej aktivity radónu, ekvivalentnej objemovej aktivity a rovnovážneho faktora F v období 12.08.2019 do 07.10.2019. ....	58
Tabuľka 7 Hodnoty $R^2$ objemovej aktivity radónu a ekvivalentnej objemovej aktivity, objemovej aktivity produktov premeny a rovnovážneho faktora F.....	63
Tabuľka 8 Stredné hodnoty sledovaných parametrov z celkového priebehu všetkých parametrov. ....	63
Tabuľka 9 Rovnovážny faktor $F$ , $F1$ , $F2$ a $F3$ . ....	65
Tabuľka 10 Porovnanie vybraných sledovaných parametrov analyzovaných pre OAR z LSCH a SK1L nameraných v areáli FMFI UK. ....	71
Tabuľka 11 Stredné denné hodnoty objemových aktivít radónu, jeho produktov premeny a ekvivalentnej objemovej aktivity za obdobie 2019-2022. ....	78
Tabuľka 12 Korelačný koeficient $R^2$ charakterizujúci korelácie produktov premeny radónu s objemovou aktivitou radónu za obdobie 2019-2022. ....	79
Tabuľka 13 Stredné hodnoty rovnovážneho faktora pre jednotlivé mesiace. ....	82
Tabuľka 14 Stredné hodnoty rovnovážneho faktora pre jednotlivé ročné obdobia. ....	83
Tabuľka 15 Stredné mesačné hodnoty vybraných meteorologických parametrov počas sledovaného obdobia 36 mesiacov obdobia .....	94
Tabuľka 16 Korelačné faktory medzi strednými dennými vlnami OAR, EOAR, PM <sub>2,5</sub> a PM <sub>10</sub> , teploty (T),vlhkosti (RH) a rýchlosti vetra (W) vypočítané pre celý rok, jar, leto, jeseň, a zimu. ....	98
Tabuľka 17 Stredné mesačné hodnoty objemových aktivít $^{214}\text{Pb}$ , $^{214}\text{Bi}$ , $^{222}\text{Rn}$ , $^{210}\text{Pb}$ a rovnovážneho faktora F.....	100
Tabuľka 18 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. ....	101
Tabuľka 19 Dosiachnuté výsledky analýzy antropogénnej zložky koncentrácie PM <sub>2,5</sub> na Trnavskom mýte.....	109



# 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. Viaceré aplikácie radónu sú v tejto práci detailne rozpracované.

Pre environmentálne aplikácie radónu je potrebné zvládnuť metódy jeho kontinuálneho monitorovania, respektíve monitorovania jeho krátko žijúcich produktov premeny. V predloženej práci sú detailne opísané viaceré metódy kontinuálneho monitorovania radónu používané na našej katedre ako aj vo svete. Niektoré z nich boli ďalej zdokonaľované a rozpracované v rámci mojej dizertačnej práce.

Jednotlivé kapitoly tejto práce sa venujú prehľadu súčasného stavu radónovej problematiky. V druhej kapitole sú opísané základné charakteristiky radónu a jeho krátko žijúcich produktov premeny. V podkapitole 2.2 sa nadväzuje na predchádzajúcu časť a opisujem ako radón a jeho produkty premeny, ktoré sú súčasťou rádioaktívnych aerosólov vstupujú do atmosféry. Problematika merania radónu a metódy, ktoré sú využívané na meranie radónu a jeho produktov premeny, sú opísane v podkapitole 2.3.

Podkapitola 2.4. nadväzuje na predchádzajúcu časť a venuje sa hlavne správaniu radónu a jeho produktov premeny v atmosfére. Pozitívne vlastnosti radónu,

ktoré je možné využiť pri riešení environmentálnych problémov sú podrobnejšie opísane v tejto časti. V podkapitole 2.5. sú popísané základné metódy určovania stability podľa Pasquilla a možnosti využitia monitorovania radónu v atmosfére, na výpočet ekvivalentnej zmiešavacej výšky. Keďže radón je dobre charakterizovaný zdroj, ktorým je výhradne pôda, je možné s dostatočnou presnosťou merať jeho koncentráciu a je možné využiť ju aj na odhad exhalčných rýchlostí niektorých skleníkových plynov. Oddiel 2.5.3. podrobnejšie opisuje štúdium rovnovážneho faktora medzi objemovou aktivitou  $^{222}\text{Rn}$  a objemovou aktivitou jeho krátko žijúcich produktov premeny. Rovnovážny faktor je dôležitý údaj, vďaka ktorému môžeme presnejšie vypočítať dobu zotrvania aerosólov v atmosfére tzv. rezidenčný čas. Určovaniu rezidenčného času aerosólov v atmosfére sa bližšie venuje oddiel 2.5.4.

V tretej kapitole sú v jednotlivých bodoch opísané ciele dizertačnej práce. Monitorovanie objemovej aktivity radónu v atmosfére má na KJFB už 25-ročnú históriu. V kapitole 4. sú podrobne opísané detekčné systémy pre meranie radónu a jeho produktov premeny. Sú to systémy pre meranie objemovej aktivity radónu na báze scintilačných komôr a monitor rozpadových produktov.

Piata kapitola nadväzuje na teoretický úvod a sú v nej predložené výsledky meraní a analýzy experimentálnych údajov spolu s diskusiou.

# 1. Prehľad súčasného stavu problematiky

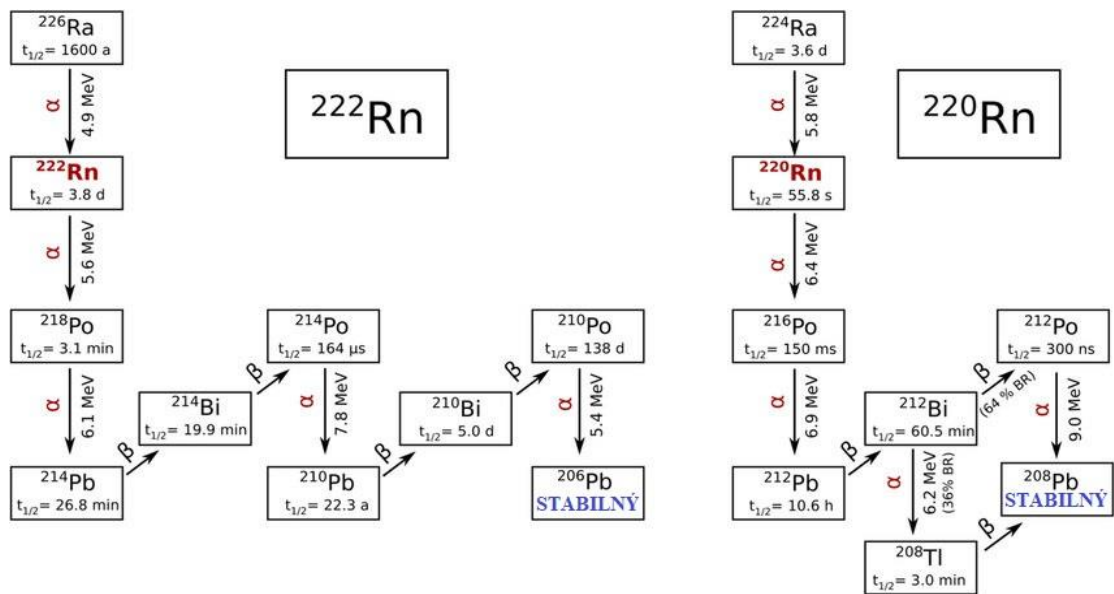
## 2.1. Fyzikálne a chemické vlastnosti radónu

Radón je s hustotou  $9,73 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$  najťažší s pomedzi vzácnych plynov, je to chemicky inertný plyn bez zápachu. Nachádza sa v VIII A skupine a kvôli jeho plne obsadenej valenčnej vrstve sa vyznačuje malou reaktivitou. Poznáme 36 jeho izotopov od  $^{193}\text{Rn}$  po  $^{228}\text{Rn}$  s ktorých ani jeden nie je stabilný. Najviac radónu vzniká v pôde a v horninách podložia. V prírode sa nachádza v atmosfére a vo vodách. Radón je posledný vzácny plyn ktorý objavil nemecký vedec Friedrich Ernest Dorn v roku 1898. Vo svojej práci [DORN, 1900] písal o rádioaktívnom plyne ktorý pochádza z rozpadu rádia. Približne v rovnakom čase Robert B. Owens pri štúdiu tória ( $^{232}\text{Th}$ ) objavil v USA rádioaktívny plyn, ktorý nazval *nitón*. Oba plyny mali rovnaké inertné vlastnosti, no mali veľmi odlišné polčasy rozpadu.

$^{222}\text{Rn}$  má najdlhšiu dobu polpremeny z pomedzi jeho troch najvýznamnejších izotopov. Všetky izotopy radónu podliehajú rádioaktívnej premene a tri z nich sú neustále produkované v premenových radoch  $^{238}\text{U}$  ( $^{222}\text{Rn}$ ), aktíniovom rozpadovom rade  $^{235}\text{U}$  ( $^{219}\text{Rn}$ ) a v premenovom rade  $^{232}\text{Th}$  ( $^{220}\text{Rn}$ ). Najstabilnejší izotop radónu  $^{222}\text{Rn}$  má dobu polpremeny 3,824 dňa. Je priamym produktom premeny  $^{226}\text{Ra}$  z uránového rozpadového radu. Sériou alfa premien sa premieňa na krátko žijúce produkty  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$  až k stabilnému  $^{206}\text{Pb}$ . Jadro  $^{218}\text{Po}$  má dobu polpremeny 3,10 min a emituje častice  $\alpha$  s energiou 6,002 MeV.  $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$  emitujú žiarenie  $\beta$  a majú doby polpremeny 26,8 min a 19,9 min. Z  $^{214}\text{Bi}$  vzniká  $^{214}\text{Po}$  ktoré má veľmi krátku dobu pol premeny (164,3  $\mu\text{s}$ ) a vyžiaréním  $\alpha$  častice s energiou 7,687 MeV sa premieňa na nestabilné  $^{210}\text{Pb}$ . Vlastnosti dcérskych produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  uránového premenového radu sú uvedené na obrázku 1.

Po  $^{222}\text{Rn}$  je druhým najrozšírenejším izotopom  $^{220}\text{Rn}$ , ktorý tiež nazývame torón, pretože pochádza z premenového radu  $^{232}\text{Th}$ . Z podložia sa ho neuvolňuje také množstvo pretože má krátku dobu polpremeny (55,6 s) a jeho väčšia časť sa stihne pred uvoľnením premeniť. Premenu  $\alpha$  sa premieňa na  $^{216}\text{Po}$ , ktoré sa po 0,145 s premieňa na  $^{212}\text{Pb}$ . Sériou premien cez  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Po}$  a  $^{208}\text{Tl}$  vzniká stabilný izotop  $^{208}\text{Pb}$ .

Urán je v prírode jeden z najrozšírenejších prvkov. V podloží sa nachádza v horninách a vo vodách. Izotopy  $^{235}\text{U}$  a  $^{238}\text{U}$  sú v prírode v stálom pomere, pričom aktivita  $^{235}\text{U}$  je asi 20 krát nižšia ako aktivity  $^{238}\text{U}$ . Izotopy radónu ktoré vznikajú v uránovom a aktíniovom rade  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$  budú približne v rovnakom pomere, lenže podiel  $^{219}\text{Rn}$  v atmosfére bude nižší, pretože sa stihne čiastočne premeniť v podloží, ešte pred tým ako sa dostane do atmosféry.



Obrázok 1 Premenné rady  $^{222}\text{Rn}$  (vľavo) a  $^{220}\text{Rn}$  (vpravo) [BASKARAN, 2016].

$^{222}\text{Rn}$  s najdlhšou dobou polpremeny spomedzi týchto izotopov radónu, z premenovej rady U-Th, má široké použitie ako indikátor v životnom prostredí. Koncentračný gradient radónu v pôde/vzduchu, povrchovom vzduchu a podzemnej vode, bol použitý ako indikátor na lokalizáciu podpovrchových ložísk uránu, predpovedanie zemetrasení, identifikáciu podpovrchových ložísk uhl'ovodíkov, hľadanie zdrojov vzdušných más, kvantifikáciu výmeny plynov medzi vodou a vzduchom v oceáne, ústiach riek a jazier a v iných zdrojoch vody, datovanie z podzemnej vody. Okrem toho nám  $^{222}\text{Rn}$  spolu s jeho produktami premeny (hlavne  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  a  $^{210}\text{Po}$ ) poskytol množstvo informácií o zdrojoch vzdušných hmôt a aerosólov, časoch zdržania a konštantách rýchlosti odstraňovania aerosólov, stabilite a vertikálnom pohybe vzdušných más a rýchlostiach depozície aerosólov. Radón tiež poskytuje informácie pre iné atmosférické znečisťujúce látky. V nasledujúcich

častiach tejto práce, budú podrobnejšie diskutované kľúčové aplikácie radónu a jeho produktov premeny.

## 2.2. Zdroje radónu

Izotopy radónu sú dcérske produkty izotopov rádia ktoré vznikli premenou  $\alpha$ . Rádium je jeden z najrozšírenejších prvkov ktoré sa nachádzajú v horninách a podloží z čoho vyplýva že najväčším zdrojom radónu je pôda a podložie. Obsah  $^{226}\text{Rn}$  sa líši podľa typu pôdotvornej horniny a podložia. Najviac rádia obsahujú vulkanické horniny ako žula alebo čadič ( $50 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ). Menej rádia obsahujú vápence a pieskovce ( $15 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ). Priemerný obsah rádia v podloží je  $25 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ . K významným zdrojom radónu patrí aj svetový oceán. Oproti pôde sa z oceánu uvoľňuje podstatne menej radónu, preto v oceánskom vzduchu bude menšia koncentrácia radónu ako v kontinentálnom [ŠÁRO a kol., 1985]. Pri premene rádia získa vzniknutý dcérsky atóm radónu kinetickú energiu vďaka ktorej prejde určitú vzdialenosť (20- 70 nm) kým sa nezastaví v pôdnych póroch alebo sa nedostane do plynnej fázy pôdy. Podiel atómov ktoré sa dostanú do plynnej fázy a tých ktoré sú vytvorené v póroch sa nazýva emanačný koeficient. Emanačný koeficient je závislý na veľkosti pôdnych zrn, vlastnosti minerálov, ktoré ich tvoria a na faktoroch akými sú vlhkosť a teplota pôdy. Bežné hodnoty emanačného koeficientu sú 0,05 až 0,7. Atómy radónu sa do pôdneho vzduchu dostávajú buď konvekčným transportom alebo difúziou prenikajú z miest z vyššou koncentráciou na miesta z nižšou koncentráciou. Ak  $A_{Rn}$  je aktivita radónu v plynnej fáze [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ], tak celková aktivita naakumulovaného radónu sa bude rovnať difúznemu transportu  $\varepsilon_a \cdot D_e \cdot \nabla^2 A_{Rn}$  rýchlosť s ktorou je produkovaný  $^{222}\text{Rn}$  ( $f \cdot A_{Ra} \cdot \lambda_{Rn} \cdot \rho$ ) – rádioaktívny rozpad ( $-\lambda_{Rn} \cdot A_{Rn} \cdot (\varepsilon_a + \kappa \cdot \varepsilon_w + \rho \cdot K)$ ). Objemovú aktivitu v pôde popisuje diferenciálna rovnica (1.):

$$\begin{aligned} & (\varepsilon_a + \kappa \cdot \varepsilon_w + \rho \cdot K) \frac{\partial A_{Rn}}{\partial t} \\ & = \varepsilon_a \cdot D_e \cdot \nabla^2 A_{Rn} - \lambda_{Rn} \cdot A_{Rn} \cdot (\varepsilon_a + \kappa \cdot \varepsilon_w + \rho \cdot K) + f \cdot A_{Ra} \cdot \lambda_{Rn} \cdot \rho \end{aligned} \quad (1.)$$

Kde:

$A_{Rn}$  je objemová aktivita radónu [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]

$A_{Ra}$  je hmotnostná aktivita rádia v pôde [ $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ]

$f$  je emanačný koeficient

- $D_e$  je difúzny koeficient radónu v pôdnych póroch [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ]
- $K$  je koeficient sorpcie radónu na povrch pôdnych zrn [ $\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1}$ ]
- $\kappa$  je koeficient rozpustnosti radónu vo vode
- $\varepsilon_a$  je objem pórov vyplnených vzduchom v jednotke objemu pôdy
- $\varepsilon_w$  je objem pórov vyplnených vodou v jednotke objemu pôdy
- $\rho$  je merná hmotnosť suchej pôdy [ $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ]
- $\lambda_{Rn}$  konštanta premeny radónu [ $\text{s}^{-1}$ ].

Aby vzťah 1 platil, predpokladáme: (i) rovnováhu rozdelenia sorbovaných atómov radónu a tých v plynnej a kvapalnej fáze; (ii) predpokladáme že hodnoty  $\varepsilon_a$  a  $D_e$  sú konštantné; (iii) transport prebieha iba difúziou do plynnej fázy. Špeciálny prípad pri riešení rovnice 1 nastáva keď ju riešime pre homogénnu nekonečne hlbokú vrstvu pôdy, pričom koncentráciu  $^{222}\text{Rn}$  na povrchu považujeme za nulovú. Dostávame tak závislosť objemovej aktivity od hĺbky ( $z$ ) v tvare:

$$A_{Rn}(z) = A_{\infty} (1 - e^{-\frac{z}{\vartheta}}) \quad (2.)$$

$$A_{\infty} = \frac{A_{Rn} \cdot f \cdot \rho}{(\varepsilon_a + \kappa \cdot \varepsilon_w + \rho \cdot K)} \quad (3.)$$

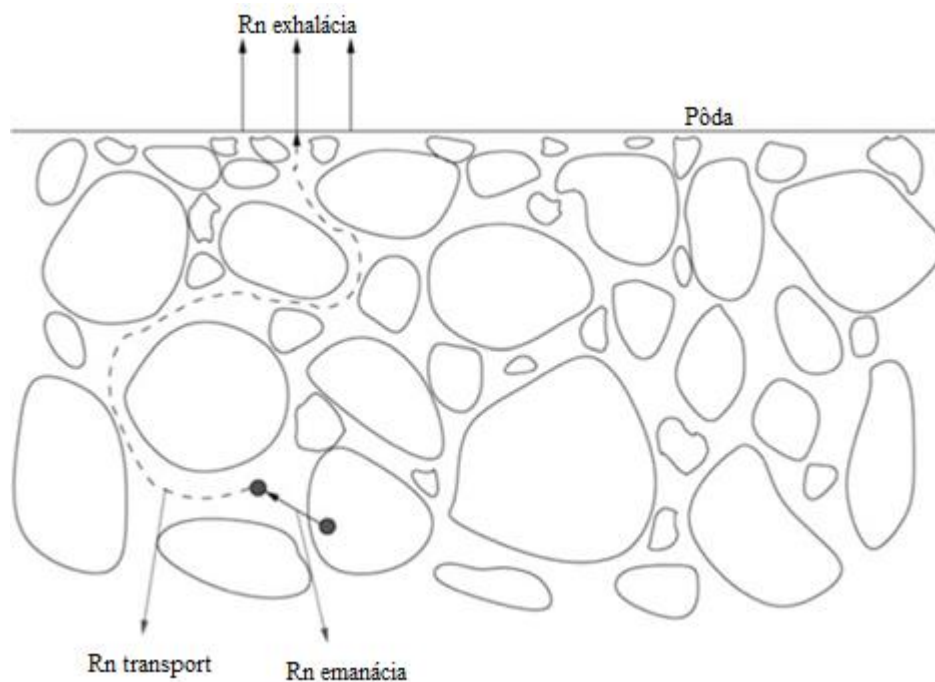
$$\vartheta = \left[ \frac{D_e}{\lambda_{Rn}} \right]^{1/2} \left[ \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_a + \kappa \cdot \varepsilon_w + \rho \cdot K} \right]^{1/2} \quad (4.)$$

Dosadením do Fickovho zákona dostaneme vzťah pre difúznu hustotu toku radónu [ $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ] z pôdy do atmosféry v tvare [NAZAROFF, 1992]:

$$J^d = \frac{\varepsilon_a D_e A_{\infty}}{\vartheta} = A_{Ra} f \rho (\lambda_{Ra} D_e)^{1/2} [\varepsilon_a / (\varepsilon_a + \kappa \varepsilon_w + K \rho)]^{1/2} \quad (5.)$$

Kde  $\vartheta$  je difúzna dĺžka (rovnicia 4.) počas ktorej môže radón difundovať počas svojej doby života. Typická vzdialenosť ktorú radón prekoná v suchej pôde je  $\sim 1 \vartheta$  pre  $^{222}\text{Rn}$  a  $\sim 1\text{cm}$  pre  $^{220}\text{Rn}$ , ale vo vlhkej pôde je nižšia, kvôli zníženej efektívnosti difúzie [NAZAROFF, 1992].

Pre typické hodnoty parametrov vystupujúcich v rovnici (5.) ( $A_{\text{Ra}}=30 [\text{Bq.kg}^{-1}]$ ; emanačný koeficient  $f=0,2$ ; hustota pôdy  $\rho=1600 [\text{kg.m}^{-3}]$ ;  $D_e=3.10^{-6} [\text{m}^2.\text{s}^{-1}]$ ;  $\varepsilon_a=0,27$ ;  $\varepsilon_w=0,13$ ;  $k=0,25$ ;  $K=1,4.10^{-5} [\text{m}^3.\text{kg}^{-1}]$ ) bola pre difúzna hustota toku radónu vypočítaná hodnota  $J^d=0,022 [\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}]$  [Nazaroff 1992].



Obrázok 2 Mechanizmus prenikania radónu do atmosféry [BASKARAN, 2016]

V pôdnom vzduchu dosahuje objemová aktivita radónu hodnoty niekoľko  $\text{kBq.m}^{-3}$  a nie je stabilná. Objemová aktivita radónu v pôde je silne ovplyvnená typom pôdy, koncentráciou materského rádionuklidu  $^{226}\text{Ra}$ , atmosférickým tlakom vlhkosťou pôdy, teplotou a zrážkami [TAIPALE, T., WINQUIST, K., 1985]. Ukazuje sa, že popísať ročný priebeh objemovej aktivity v pôdnom vzduchu môže byť komplikovaný proces. Z publikovaných výsledkov však vyplýva, že vo všeobecnosti objemová aktivita dosahuje minimálne hodnoty v letných mesiacoch a maximálne na jeseň a v zime. Denné priebehy vykazujú maximum počas dňa a minimum v neskorých nočných až skorých ranných hodinách [LINDMARK, A., ROSEN, B., 1985].



Výsledky rôznych autorov sa však môžu líšiť. Vplyv meteorologických parametrov bol tak isto popísaný rôznymi autormi, ide však o veľmi komplikovaný proces a aj tieto výsledky môžu byť v literatúre rôzne. Pri porovnaní dostupných výsledkov rôznych autorov môžeme konštatovať jasnú koreláciu medzi exhalačnou rýchlosťou a teplotou, kedy nárast teploty vzduchu mal vplyv na zvýšenie difúzneho koeficientu [SUNDAL a kol., 2008; MORENO et al., 2009, 2016]. Podobne bola pozorovaná aj antikorelácia medzi objemovou aktivitou radónu v pôde a rýchlosťou vetra a tlakom [HOLÝ a kol., 1997]. Veľmi silný nárast objemovej aktivity radónu v pôdnom vzduchu bol pozorovaný aj pri vysokej vlhkosti a úhrne zrážok [SUNDAL a kol., 2008; MORENO et al., 2009, 2016]. Miklyaev a kol. zaznamenali drastické zníženie rýchlosti exhalácie radónu na jeseň, keď teplota atmosférického vzduchu bola nižšia ako teplota vo vnútri skalného masívu. Na jar sa zase exhalačná rýchlosť radónu z pôdy prudko zvyšuje potom, čo sa teplota vzduchu stane vyššou ako teplota v horninovom masíve. To znamená, že sezónne zmeny exhalácie radónu sú spojené s inverziou teplotného rozdielu [MIKLYAEV a kol., 2020].

### 2.3. Metódy merania radónu

Na meranie objemových aktivít radónu a jeho produktov premeny, bolo vyvinutých mnoho techník. Keďže objemové aktivity radónu sa líšia v závislosti od prostredia, menia sa aj špecifikácie a druh metódy merania a jeho citlivosť. Koncentrácie radónu v povrchových vodách sú menšie ako v podzemných vodách a metódy na ich analýzu sa môžu líšiť. Rozdiel môžeme tiež nájsť medzi vzduchom v atmosfére, ktorý obsahuje značne nižšie objemové aktivity radónu než vzduch v pôde. Pri detekcii radónu sa často pohybujeme pri aktivitách tesne nad úrovňou pozadia a citlivosť detekčných systémov je najdôležitejší parameter pre detekciu veľmi nízkej koncentrácie radónu (Tabuľka 1).

Tabuľka 1 Prehľad metód merania radónu

Typ detektora	Odber Pasívny/ Aktívny	Neistota (%)	Odber vzorky	Cena
Stopové detektory	Pasívny	10-25	1-12 mesiacov	Nízka
Adsorbcia na aktívne uhlie	Pasívny	10-30	2-7 dní	Nízka
Elektretová komora	Pasívny	8-15	5 dní - 1 rok	Stredná
Kontinuálne detekčné systémy	Aktívny	10	1 hodina - roky	Vysoká

Metódy na meranie radónu môžeme klasifikovať podľa týchto troch charakteristík:

1. podľa toho či sa jedná o metódu ktorou je možné merať priamo  $^{222}\text{Rn}$  alebo jeho produkty premeny
2. podľa časového charakteru merania
3. podľa druhu detekcie

Najčastejšie sa vyskytujú metódy pri ktorých sú detegované alfa častice. Niekedy je detegovaná jedna častica pochádzajúca z  $^{222}\text{Rn}$  alebo  $^{218}\text{Po}$ , alebo sa používajú scintilačné komory v ktorých na jednu premenu  $^{222}\text{Rn}$  detegujú tri alfa častice pochádzajúce z  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$   $^{214}\text{Po}$ . Existujú aj metódy založené na detekcii gama kvánt emitovaných pri premene produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  ( $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ).

Podľa časového charakteru merania môžeme rozdeliť metódy na bodové, kontinuálne a integrálne. Bodové merania sa najviac uplatnili v terénnom výskume. Vzorky vôd alebo vzduchu môžu byť nazbierané na viacerých miestach v krátkom čase a ich vyhodnotenie trvá len niekoľko hodín. Vyhodnotenie dát z veľkého počtu vzoriek je však veľmi časovo náročné a preto nie sú bodové odbery vhodné na dlhodobé merania. Kontinuálne metódy poskytujú vždy aktuálnu informáciu o objemovej aktivite radónu. Keďže zber vzorky a vyhodnocovanie beží simultánne, je možné detegovať rýchle a výrazné zmeny koncentrácií radónu.

Integrálne metódy nám poskytujú určitú priemernú hodnotu koncentrácie radónu, ktorá bola nameraná za určité časové obdobie. Takéto merania sú užitočné na merania strednej hodnoty za určité časové obdobie, alebo pravidelné určovanie priemerných hodnôt v budovách a pobytových priestoroch. Dobrým príkladom takýchto detektorov sú pasívne detektory ktoré sú cenovo dostupné, efektívne a dokážu zmerať koncentráciu radónu v prostredí. V integrálnom režime môžu pracovať aj kontinuálne monitory využívané na dlhodobé merania.

### **2.3.1. Stopové detektory v pevnej fáze**

Použitie stopových detektorov je vhodné pre integrálne merania v interiéri. Typické expozičné časy pre túto metódu sú jeden rok. Výhoda tejto metódy spočíva v jednoduchosti a nízkej cene. Typicky má stopový detektor pozostávať minimálne z krytu, ktorý umožňuje vstup  $^{222}\text{Rn}$  do objemu detektora cez priepustnú membránu. Plocha a hrúbka membrány je určená tak, aby sa zamedzilo vstupu iných alfa rádionuklidov v aerosóle, vrátane  $^{219}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$ . Do objemu preto vstúpi iba  $^{222}\text{Rn}$  a emitované sú 3 alfa častice z premeny  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  a  $^{214}\text{Po}$ .

### **2.3.2. Elektrety**

Elektrety sú materiály schopné udržať pseudopermanentný elektrický náboj. Radón obsiahnutý vo vzduchu difunduje do komory cez filter, ktorý nás zbaví aerosólov v presávanom plyne. Ióny pochádzajúce z rádioaktívnej premeny vo vnútri komory vytvárajú elektrický prúd. Kladný elektretový náboj k sebe priťahuje záporne nabitie ióny a pokles napätia bude úmerný objemovej aktivite radónu vo vzduchu. Medzi výhody tejto techniky patrí nízka cena a jednoduché použitie. Elektretové komory pozostávajú z elektrety (elektricky nabitý Teflonový disk) umiestnenej vo vnútri elektricky vodivej komory. Takýto detekčný systém je schopný zbierať údaje za dobu až 12 mesiacov pri objemovej aktivite  $150 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ .

### 2.3.3 Scintilačné komory

Scintilačné komory patria k najvýznamnejším metódam merania radónu. Prvú scintilačnú komoru predstavil Henry F. Lucas a dnes je jej podoba známa ako Lucasova komôrka [LUCAS, 1957]. Jej vnútro je potiahnuté vrstvou striebra aktivovaného sulfidom zinočnatým (ZnS (Ag)) a jedna strana (zvyčajne spodná strana) má priehľadný rovný povrch. Do Lucasovej komôrky sa cez filter naberie vzduch. Komôrka je následne umiestnená nad fotonásobičom a je meraný svetelný výt'azok vo forme svetelných zábleskov, z ktorých sa vypočíta objemová aktivita. Vyhodnotenie merania môže trvať aj niekoľko hodín.

Lukasove komôrky sú veľmi účinné, no dávajú nám možnosť iba bodových meraní. Kontinuálne radónové monitory na báze scintilačných komôr sú založené na výpočte, ktorý berie do úvahy nárast produktov premeny v aktívnom objeme scintilačnej komory, cez ktorú je kontinuálne presávaný. Výhodou tejto techniky je jej účinnosť a pracuje vo veľmi dobrej zhode v porovnaní s komerčne dostupnými detektormi ako AlphaGUARD.

### 2.3.4. Adsorpcia radónu na aktívneho uhlie

Jedná sa o detektory pracujúce v pasívnom režim. Princíp spočíva v adsorbcií radónu na aktívnu plochu aktivovaného uhlia. Po odbere vzoriek je detektor uzatvorený a radón podlieha premene. Keď sa dostane povrch aktívneho uhlia do styku so vzduchom obsahujúcim radón, časť atómov, ktorá na tento povrch narazí zostane na ňom určitú dobu viazaná. Po určitom čase vzniká rovnovážny stav, v ktorom sa celkové množstvo atómov v adsorbovanom stave nemení, pretože počet atómov, ktoré sa adsorbujú na povrchu adsorbenta, je rovnaký ako počet atómov, ktoré sa z neho uvoľňujú – vzniká tzv. adsorpčná rovnováha. Spôsob pasívneho zberu radónu, keď sa adsorpčná rovnováha dosahuje po dostatočne dlhej dobe, nachádza uplatnenie predovšetkým v tých metodikách, cieľom ktorých je určiť priemernú objemovú aktivitu radónu v dlhšom časovom období (hodiny, dni, týždne) [NCRP, 1998]. Táto metóda poskytuje iba dobrý odhad o objemovej aktivite radónu v čase odberu.

### 2.3.5. Ionizačné komory

K najstarším radónovým detektorom patria aj metódy založené na meraní v ionizačnej komore. Vzorka vzduchu sa privádza do kovovej valcovej nádoby s atypickým objemom niekoľkých litrov cez vhodnú trasu na ktorej je zbavená

vlhkosti. Komora meria objemovú aktivitu radónu priamo [NEHER, 1994]. Celkový nameraný prúd je úmerný energii z vonkajšieho gama žiarenia a premeny radónu a tórónu vo vnútri komory.

### **2.3.6. Kontinuálne metódy merania radónu**

Pri kontinuálnom meraní je vzorka zbieraná a analyzovaná zároveň, čo umožňuje vidieť výsledky v reálnom čase. Takéto systémy môžu byť požadované pri meraní na miestach kde sa výrazne mení koncentrácia radónu. Pri výrobe kontinuálnych monitorovacích systémov sa dbá o to aby systém dokázal na zmeny koncentrácie radónu reagovať dostatočne rýchlo a mal čo najväčšiu citlivosť. Konvenčné radónové monitory používajú ionizačné komory, scintilačné detektory alebo kremíkové PIN diódy. Z uvedených sú to práve kremíkové PIN diódové detektory ktoré majú najvyššiu účinnosť detekcie alfa častíc (dosahujú takmer 100% účinnosť) a vysoké energetické rozlíšenie. V nasledujúcich riadkoch si predstavíme niektoré najčastejšie používané detektory radónu vo svete.

### **2.3.7. Monitor RAD7**

Durridge RAD7 je presný všestranný nástroj pre merania radónu. Detektor typu RAD7 je zariadenie s dlhou životnosťou. Je široko používaný v laboratóriách po celom svete, testermi radónu a domových inšpektorov, v baniach a púšťach, na oceáne a na sopkách pri extrémnych teplotách. Do detektora je nasávaný vzduch ktorý je na vstupnom filtri zbavený produktov premeny a očistený vstupuje do akumuláčnej nádoby. Detekčný systém funguje na princípe elektrostatického zberu produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  a jeho detekčný limit je 1 mBq [MASEVHE a kol., 2017]. Je vyrobený tak, aby odolal každodennému používaniu v teréne. RAD7 chráni robustné puzdro, spolu so zabudovaným vzduchovým čerpadlom, dobíjacími batériami a bezdrôtovou tlačiarňou. V prípade potreby, detektor môže zbierať dáta a uchovať ich pre neskoršiu tlač alebo stiahnutie do PC [EL-TAHER, 2016].

### **2.3.8. AlfaGUARD**

Alpha GUARD je veľmi obľúbený, pomerne rozšírený a kompaktný prenosný merací systém pre kontinuálne meranie objemovej aktivity radónu a jeho produktov premeny vo vzduchu a tiež vybraných meteorologických parametrov. AlphaGUARD je možné využiť pre meranie exhalačných rýchlostí, vnútornej a vonkajšej atmosféry, meranie pôdneho vzduchu, meranie v jaskyniach a vodných rezervoároch. Jeho výhodou je že zároveň meria aj teplotu a vlhkosť vzduchu. Citlivosť detektora je od

2 do 2 000 000 Bq.m<sup>-3</sup> a rýchlo reaguje na zmeny koncentrácie radónu. AlphaGUARD využíva princíp ionizačnej komory . Detektor má zabudovanú ionizačnú komoru v ktorej je radón detekovaný alfaspektrometricky. Merania je možné vykonať iba pomocou radónového detektora (AlphaGUARD), alebo je k nemu možné pridať niekoľko prídavných súprav ako AquaKIT, alebo kit pre meranie produktov premeny radónu. Merané aktivity <sup>222</sup>Rn sú analyzované počítačom pomocou softvéru DataEXPERT od GENITRON Instruments. [ALPHAGUARD, 2012].

## 2.4. Využitie Radónu pre štúdium atmosféry

### 2.4.1. Vertikálna a priestorová distribúcia radónu

Vertikálna distribúcia  $^{222}\text{Rn}$  v atmosfére je silne ovplyvnená materiálom, ktorým je tvorený zemský povrch. Druh pôdy, skaly a minerály spolu s ďalšími procesmi, ktoré vedú k premiešavaniu atmosféry a pohybu aerosólov vytvárajú vertikálny profil  $^{222}\text{Rn}$  ktorý sa mení s výškou. Plynný radón nie je v atmosfére vychytávaný, ale jeho produkty premeny sú. Keďže doba polpremeny radónu je menšia ako zmiešavací čas atmosféry [TUREKIAN a GRAUSTEIN, 2003], najvyššie koncentrácie radónu sú najčastejšie v prízemnej časti atmosféry ( $3 - 8 \text{ Bq.m}^3$ ). S výškou koncentrácia klesá a na úrovni tropopauzy dosahuje hodnoty okolo  $40 \text{ mBq.m}^{-3}$  [MOORE a kol. 1977; KRITZ a kol., 1993]. Výška troposféry, ktorú ohraničuje tropopauza sa mení sezónne, ale aj s nadmorskou výškou a šírkou. Tropopauza je prechodná vrstva medzi troposférou a stratosférou v ktorej končí pokles teploty charakteristický pre troposféru a kde končí vertikálny pohyb a je obmedzený vývoj oblačnosti. Tropopauza slúži ako bariéra cez ktorú radón prejde do nižších vrstiev stratosféry, len v špeciálnych prípadoch, kedy je vertikálny ťah silnejší [BASKARAN 2011].

V prízemných vrstvách atmosféry je koncentrácia radónu ovplyvnená intenzitou vertikálneho a horizontálneho prúdenia vzduchu. V prípade že sú podmienky stabilné a vertikálne a horizontálne prúdenie je minimálne, tak sa radón dostáva z pôdy difúziou a objemová aktivita radónu v spodnej vrstve atmosféry narastá. Pri nepriaznivých podmienkach, keď je horizontálne a vertikálne prúdenie maximálne, je uvoľnený radón rýchlo odnášaný a jeho koncentrácia v spodnej vrstve atmosféry je nízka. Vertikálny profil koncentrácie radónu možno opísať parciálnou diferenciálnou rovnicou [JACOBI, 1963] :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( K(z) \cdot \frac{\partial n}{\partial z} \right) - v \cdot \frac{\partial n}{\partial z} - \lambda_{Rn} \cdot n$$

(6.)

kde  $n$  je koncentrácia radónu

$t$  je čas

$z$  je vzdialenosť od povrchu zeme

$K$  je koeficient turbulentnej difúzie

$v$  je vertikálna rýchlosť vetra

$\lambda_{Rn}$  je konštanta premeny radónu

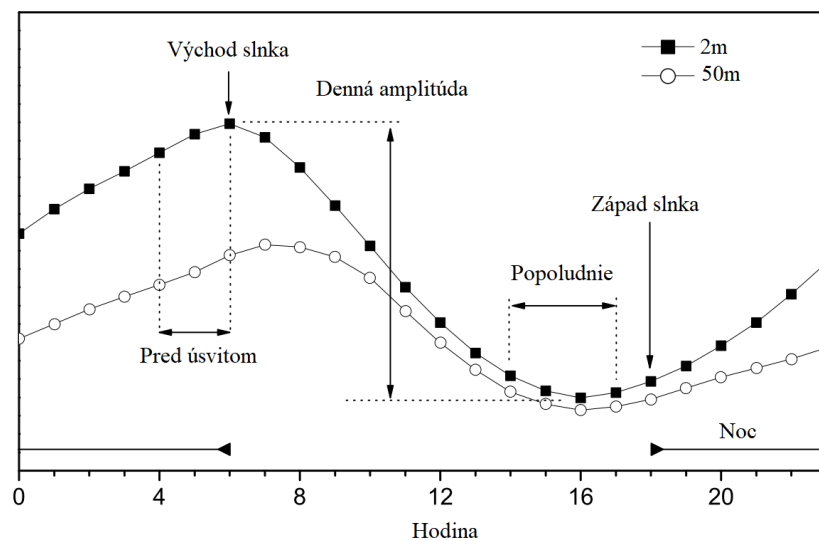
Koncentrácie radónu v rôznych vrstvách atmosféry, ktoré opísal Kritz [1998] vo svojej práci pochádzajú z dát z 11 vertikálnych profilov. Najvyššie koncentrácie radónu sa nachádzajú pod úrovňou kondenzácie oblakov, kde hodnoty dosahujú  $2,2 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  (14. Jún – 7 Júl, 1994, výška 800m). Namerané objemové aktivity ďalej klesajú až k minimálnym hodnotám ( $0,05 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ) vo výške 2 – 4 km. So stúpajúcou výškou 4 – 6km je rozptyl nameraných hodnôt väčší. Objemová aktivita v oblasti tropopauzy a vo vyššej časti troposféry je pod úrovňou  $40 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$  [LIU a kol., 1984] a jej hodnota nameraná v takýchto výškach je výsledkom konvekčného transportu z nižšej časti troposféry.

V práci [DOI, M., KOBAYASHI, S., 1994] bolo bližšie preskúmané vertikálne rozloženie objemovej aktivity radónu v prízemnej vrstve atmosféry, umiestnením pasívnych detektorov radónu/torónu na 10 rôznych miestach a v 5 rôznych výškach od zeme: 0,04 m, 0,15 m, 0,25 m, 0,7 m a 1,0 m. Detektory boli vystavené atmosférickému radónu a torónu 2 mesiace. Hodnoty priemernej ročnej objemovej aktivity radónu pre každé miesto sa významne nelíšili. Získaný ročný priemer bol  $3,85 \pm 0,19 \text{ Bq m}^{-3}$ . Naopak objemové aktivity torónu vykazovali silný pokles s nadmorskou výškou, čo je však dôsledkom jeho krátkeho polčasu rozpadu (55,8s) [DOI, M., KOBAYASHI, S., 1994].



### 2.4.2. Variácie radónu v atmosfére

Pri dlhodobých meraniach koncentrácie radónu je možné pozorovať charakteristické denné a sezónne variácie, ktoré súvisia z atmosférickou stabilitou a neustále sa meniacimi podmienkami v spodnej vrstve atmosféry. Teplotný gradient vo výškach medzi 1 až 5 m od zeme je periodicky pozitívny a negatívny. V noci a v ranných hodinách ráno je pozitívny teplotný gradient spôsobujúci inverzné premiešavanie atmosféry, čo vedie k najvyšším vonkajším koncentráciám radónu. Na druhej strane na poludnie a popoludní, spôsobuje negatívny teplotný gradient najsilnejšie premiešavanie atmosféry, čo spôsobuje najnižšie koncentrácie radónu [PORSTENDÖRFER a kol., 1998, CHAMBERS, 2015]. Takýto trend je najtypickejší počas slnečných bezoblačných dní a nocí, počas ktorých nedochádza k výmene vzduchu. Pokles koncentrácie radónu až na minimum, ktoré dosahuje v podvečerných hodinách, spôsobuje narušenie teplotnej inverzie v prízemnej vrstve. Po východe slnka začínajú slnečné lúče ohrievať zem a naruší sa tak teplotná inverzia v tejto vrstve. Teplý vzduch stúpa nahor a radón sa dostáva do vyšších vrstiev. Týmto spôsobom vzrastá intenzita vertikálnej výmeny vzduchu, zatiaľ čo koncentrácia radónu v prízemnej vrstve klesá. Najsilnejšia vertikálna výmena nastáva v popoludňajších hodinách. S klesajúcou výškou slnka sa znižuje ohrievanie zemského povrchu a vertikálne prúdenie vzduchu sa spomaľuje, v dôsledku čoho koncentrácia radónu narastá. Počas noci sa teplota pôdy ochladzuje. Vertikálna výmena vzduchu sa zastavuje až kým nedosiahne maximum krátko pred východom slnka. Takýmto spôsobom vznikajú denné variácie koncentrácie radónu.



Obrázok 3 Schéma časových stredných denných koncentrácií radónu [PORSTENDÖRFER a kol., 1998].

Denné variácie s maximom pred východom slnka a minimom pred západom slnka sú veľmi často pozorovateľné, avšak ich hodnoty sa líšia denne aj sezónne. Veľký rozptyl hodnôt medzi minimálnymi a maximálnymi hodnotami je spôsobený rozdielnou intenzitou vertikálneho premiešavania a dobou trvania tepelnej inverzie. Koncentrácia radónu môže byť ovplyvnená pretrvávajúcimi veternými podmienkami, pričom pri rýchlosti vetra nad  $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  budú zabraňovať jeho akumulácii v spodnej časti atmosféry. Počas dní kedy fúka silný vietor, je radón rozptyľovaný do veľkého priestoru a dostáva sa do vyšších častí atmosféry. Počas takýchto dní pozorujeme minimálne koncentrácie radónu. V menšej miere koncentráciu radónu ovplyvňuje oblačnosť a daždivé počasie, počas ktorého dopadá na zemský povrch menej slnečného svetla. Dočasné zmeny v objemovej aktivite radónu spôsobené meteorologickými podmienkami (tlak vzduchu, rýchlosť vetra, teplota, vlhkosť, veľkosť snehovej prikrývky) a vertikálnym premiešavaním boli publikované mnohými autormi [HOLÝ, 2002; ARNOLD, 2009; BACIU, 2005; BIERNACKA, 2006; DUENAS, 1996; PERINO, 2001; SESANA, 1998, 2001].

Stabilita atmosféry je počas roka ovplyvnená rôznymi meteorologickými faktormi, ktoré sú typické pre dané ročné obdobie. Zmeny stability atmosféry počas roka vytvárajú sezónne variácie objemovej aktivity radónu v atmosfére. Najnižšia aktivita je pozorovaná v jarňých mesiacoch (apríl) a najvyššia v októbri. Denná amplitúda koncentrácie radónu je najväčšia v letných mesiacoch, kedy sú radiačný ohrev povrchu zeme a s ním spojená vertikálna výmena vzduchu najintenzívnejšie. Koncom jesene a v zime je denná amplitúda nevýrazná, na čom sa podieľajú série dní s inverziou a nižšie radiačné ochladzovanie a ohrievanie povrchu v dôsledku väčšieho množstva oblačnosti. Typické sezónne variácie boli bližšie preskúmané v práci, v ktorej bola kontinuálne monitorovaná objemová aktivita radónu vo vnútornej a vonkajšej atmosfére počas 4 rokov, na jednej lokalite v japonskej Chibe, pomocou aktívneho zariadenia Alpha GUARD [JANIK a BOSSEW, 2016]. Podľa dosiahnutých výsledkov autori uvádzajú, že denné variácie sú výraznejšie pre radón vo vonkajšej atmosfére než radón vo vnútornej atmosfére. Maximálna pozorovaná objemová aktivita radónu vo vonkajšej atmosfére bola v zimných mesiacoch a objemová aktivita vo vnútornej atmosfére v teplých letných mesiacoch. Autori tiež naznačujú, že hodnoty objemovej aktivity vo vnútornej a vonkajšej atmosfére negatívne korelujú s koreláciou  $R^2 = -0,18$  [JANIK a BOSSEW, 2016]. Taktiež sa zistil lineárny vzťah medzi hodnotami objemovej aktivity radónu vo vnútornej atmosfére a ekvivalentnou

objemovou aktivitou radónu vo vonkajšej atmosfére s korelačným koeficientom  $R^2 = 0,9$  [SAHOTA, 2005].

Keď hovoríme o denných a sezónnych variáciách, tak zaujímavé môže byť aj preskúmanie ročných variácií objemovej aktivity radónu vo vonkajšej atmosfére. Veľkosť variácií môže pomôcť odhadnúť, nakoľko reprezentatívna je hodnota ročného priemeru objemovej aktivity radónu vo vonkajšej atmosfére, ktorá sa získava na rovnakom mieste v rôznych rokoch. V prácach, v ktorých sa venovali meraniu objemovej aktivity radónu vo vonkajšej atmosfére niekoľko po sebe idúcich rokov nepreukázali významné (<15 %) rozdiely medzi ročnými priemernými hodnotami [KÜMMEL a kol., 2014; DESIDERI, 2006].

### **2.4.3. Aerosóly a produkty premeny radónu v atmosfére**

Aerosóly ktoré sa nachádzajú v atmosfére sú tvorené rôzne veľkými čistočkami ktoré sa nachádzajú vo všetkých častiach atmosféry. Aerosól je všeobecne definovaný ako suspenzia kvapaliny alebo pevnej látky v plyne. Zdravotné riziko a hlavne riziko vzniku akútnych a chronických respiračných chorôb sa zvyšuje s ich prítomnosťou v prízemnej časti atmosféry.

Aerosóly sú jadrom environmentálnych problémov, ako je globálne otepľovanie, fotochemický smog, poškodzovanie stratosférického ozónu a zlá kvalita ovzdušia.

Aerosóly sa pohybujú v rozsahu veľkosti od  $0,001 \mu\text{m}$  ( $0,001 \mu\text{m} = 10^{-9} \text{ m} = 1 \text{ nm} = 10 \text{ \AA}$ ) do  $100 \mu\text{m}$  ( $10^{-4} \text{ m}$ ), takže rozsah ich veľkostí siaha do niekoľkých rádov, od takmer makroskopických až po takmer molekulárne veľkosti. Všetky vlastnosti aerosólu závisia od veľkosti častíc, niektoré veľmi silne. Najmenšie aerosóly dosahujú veľkosť veľkých molekúl plynu a majú mnoho rovnakých vlastností. Najväčšie sú viditeľné zrná, ktorých vlastnosti možno opísať newtonovskou fyzikou. Existujú rôzne typy aerosólov, ktoré sú klasifikované podľa fyzickej formy a spôsobu vzniku. Bežne používané výrazy sú prach, dym, para, hmla a rosa [COLBECK a LAZARDIS, 2013].

Na rozdelenie aerosólov v atmosfére môžeme použiť rôzne kritériá. Podľa spôsobu ich vzniku ich delíme na primárne alebo sekundárne. Primárne aerosóly sú atmosférické častice, ktoré sú priamo emitované alebo priamo vstupujú do atmosféry, zatiaľ čo sekundárne aerosóly sú atmosférické častice vytvorené in situ agregáciou alebo nukleáciou z molekúl v plynnom skupenstve (premena plynu na častice). Častice v atmosfére pozostávajú zo zmesi pevných častíc, kvapiek kvapaliny a kvapalných zložiek obsiahnutých v tuhých časticiach. Vlastnosti častíc závisia od

koncentrácie a ich fyzikálno-chemickým a morfológickým charakteristík, čo nepriamo súvisí od typu zdroja z ktorého pochádzajú. V súvislosti so zdrojmi aerosólov môžeme hovoriť o prírodných a antropogénnych zdrojoch. Prírodné zdroje zahrňujú vulkanickú činnosť, morské aerosóly, lesné požiare alebo peľ rastlín. Aerosóly, ktoré môžu byť produkty spaľovacích procesov, alebo priemyselnej činnosti nazývame antropogénne.

K významným prírodným aerosólom, môžeme zaradiť skupinu rádioaerosólov. Ich koncentráciu je možné presne zmerať a ich štúdium je dôležité pre lepšie pochopenie mechanizmu transportu a distribúcie rádionuklidov v životnom prostredí a dynamiky správania sa aerosólov v atmosfére. Pre potreby štúdia aerosólov preto možno použiť radón a jeho krátko žijúce produkty premeny nachádzajúce sa v atmosfére, t. j.  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Po}$ .

Keď už poznáme pôvod aerosólov je dôležité charakterizovať vlastnosti častíc ktoré takéto aerosól tvoria. Veľkosť častíc aerosólu je najdôležitejším parametrom na určenie správania sa aerosólu. Ak majú všetky častice rovnakú veľkosť, aerosól sa nazýva monodisperzný. V prírode je to mimoriadne zriedkavé. Vo všeobecnosti majú častice rôznu veľkosť a takéto aerosóly sa nazývajú polydisperzné. Keď sú častice chemicky identické, aerosól sa nazýva homogénny. Tvary častíc možno rozdeliť do troch všeobecných tried: Izometrické (Tri rozmery častice sú približne rovnaké, napríklad sférické častice); Doštičky (Častica má dva dlhé rozmery a tretí malý, napríklad listy a kotúče); Vlákna (Častica má jeden dlhý rozmer a dva oveľa menšie, napríklad ihly a azbest).

Keď sú častice sférické, možno použiť ich polomer alebo priemer na opis ich veľkosti. Keďže väčšina častíc je nepravidelného tvaru, treba použiť iné parametre. Priemer (veľkosť) je preto často vyjadrený rýchlosťou usadzovania častíc, kedy sa všetky častice s podobnou rýchlosťou usadzovania považujú za častice rovnakej veľkosti, bez ohľadu na ich skutočnú veľkosť, zloženie alebo tvar. Dve najbežnejšie definície sú: Aerodynamický priemer v literatúre ho často nájdeme pod skratkou *AMAD* (častice akéhokoľvek tvaru alebo hustoty budú mať rovnaký aerodynamický priemer, ak je ich rýchlosť usadzovania rovnaká) a Stokesov priemer (Priemer gule s rovnakou hustotou akú má príslušná častica, ktorá má rovnakú rýchlosť usadzovania ako daná častica).

Stokesov priemer a aerodynamický priemer sa líšia iba tým, že Stokesov priemer zahŕňa aj hustotu častíc, zatiaľ čo aerodynamický priemer nie. Bežne sa používa aj ekvivalentný priemer, keď sa veľkosť častíc meria špecifickou technikou.

Meranie zvyčajne zodpovedá špecifickej fyzikálnej vlastnosti. Ak sa použije elektricky indukovaný pohyb, získa sa priemer ekvivalentný pohyblivosti. Stanovenie distribúcie podľa veľkosti aerosólu je jedným z najdôležitejších aspektov pri meraní a modelovaní dynamiky aerosólov. Veľkosť častice možno určiť rôznymi prostriedkami, vrátane meraní rozptylu svetla, charakterizácie aerodynamického odporu častice a merania jej elektrickej mobility alebo rýchlosti usadzovania.

Najbežnejšie sa používa delenie na  $PM_{2,5}$  a  $PM_{10}$ .  $PM_{10}$  sú definované ako častice vo vzduchu, ktoré prechádzajú cez vstup vzorkovača s 50% účinnosťou zberu častíc s priemerom  $10\ \mu\text{m}$ , ktorý dovoľuje zber častíc pod túto veľkosť [EURÓPSKA KOMISIA, 2008];  $PM_{2,5}$  sú definované podobne.

Niekoľko štúdií preukázalo, že delenie podľa veľkosti okolitých aerosólov možno reprezentovať aj režimami/módmi. Je však potrebné rozlišovať medzi charakterizáciou aerosólu podľa veľkosti priemeru častice alebo módu. Napríklad taká obyčajná aerosólová hmota obsahuje typicky jemný aj hrubý mód častíc a prekrytie ich rozsahu je asi  $1\text{--}3\ \mu\text{m}$  v priemere. [DUSEK a kol., 2006].

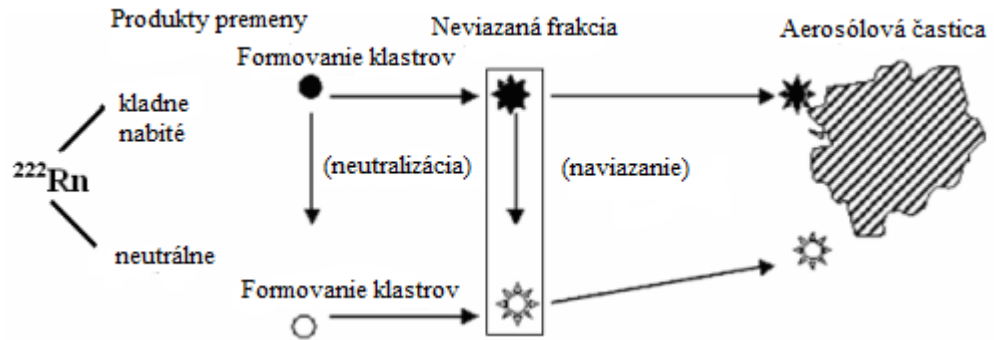
Rozdelenie podľa veľkosti častíc ( $D_p$  = priemer častice s aritmetickou strednou hodnotou) má u atmosférických aerosólov 4 modálne distribúcie. V modálnej distribúcii možno pozorovať niekoľko podkategórií podľa odlišných zdrojov a zloženia častíc aerosólu:

- TSP ; Úplne suspendované častice (*Total suspended particulate matter*)  $D_p \sim 0,35\ \mu\text{m}$
- $PM_{10}$ ; Častice ktorých priemer je menší ako  $10\ \mu\text{m}$
- $PM_{2,5}$ ; Častice ktorých priemer je menší ako  $2,5\ \mu\text{m}$
- Nukleačný mód; ( $D_p < 0,02\ \mu\text{m}$ ; životnosť  $\approx 1$  hodina; vznik nukleáciou za účasti plynu  $\rightarrow$  vznik nových častíc; zložený z iónov a organických zlúčenín);
- Aitkenov mód; ( $0,02 < D_p < 0,1\ \mu\text{m}$ ; vznik priamou emisiou zo spaľovacích procesov; zložený z organických zlúčenín, kovov a iónov);
- Akumulačný mód; ( $0,1 < D_p < 2,5\ \mu\text{m}$ ; životnosť  $\approx$  týždne; vznik koaguláciou menších častíc, kondenzáciou kvapalných; zložený zo síranov, dusičnanov organických zlúčenín a kovov),
- Hrubý aerosol; ( $D_p > 2,5\ \mu\text{m}$ ; životnosť  $\approx$  hodiny až dni; vznik mechanickým rozkladom a eróziou zo stavieb a dopravy);
- Ultra jemný aerosól; (Nukleačný + Aitken + akumulčný mód).

Častice prenášané vzduchom obsahujú rôzne chemické zložky a rozsah ich veľkostí môže byť od niekoľkých nanometrov, až do niekoľkých stoviek mikrometrov [HINDS, 1999]. Atmosférické aerosólové častice absorbujú a rozptyľujú slnečné žiarenie. Aerosólové častice tiež pôsobia ako kondenzačné jadrá pre tvorbu kvapiek.

Nukleácia je počiatocným štádiom fázového prechodu častíc do aerosólu. Patrí tak k hlavným krokom tvorby nových častíc, z plynných prekurzorov. Homogénna nukleácia vyjadruje tvorbu nových častíc bez prítomnosti už existujúcich častíc. V atmosfére, kde existujú rôzne skondenované pary v nízkych koncentráciách však prevláda binárna (dvojjložková) alebo viacjložková nukleácia [LAZARIDIS, 2011]. Pri homogénnej nukleácii sa z nasýteného plynu zrážkami medzi molekulami vytvárajú malé klastre. Nukleácia nastáva, keď častica alebo klaster prejde cez energetickú bariéru a molekulárny tok na povrch častice prekročí molekulárny tok z povrchu, takže klaster rastie. Klaster, ktorý je tesne na pokraji stať sa časticou (t. j. dosahuje veľkosť častíc atmosférických aerosólov) sa nazýva kritický klaster. Nukleácia môže nastať aj na povrchu už existujúcej častice v procese nazývanom heterogénna nukleácia. Energetická bariéra pre tvorbu klastrov pri heterogénnej nukleácii je zvyčajne nižšia ako pri homogénnej nukleácii [WINKLER a kol., 2008].

Vznik nových častíc nedokazuje existenciu procesu nukleácie, no napriek tomu sa nukleácia často používa ako synonymum pre tvorbu nových častíc. Distribúcia veľkosti aktivity produktov rozpadu radónu s krátkou životnosťou je dôležitým parametrom pre odhad efektívnej dávky od radónu inhaláciou, pretože množstvo inhalovanej aktivity v pľúcach závisí predovšetkým od veľkosti častíc. Aerosól s produktami premeny od radónu v atmosfére vzniká v dvoch krokoch. Po premene z plynného radónu, vznikajú najmä kladne nabité produkty, ktoré sa neutralizujú a vznikajú klastre. Novo vzniknuté klastre, kladne nabité alebo neutrálne tvoria takzvanú voľnú frakciu. Následne sa väčšia časť klastrov a novo vzniknutých jadier preferenčne naviaže na aerosólové častice rôznych veľkostí. Tento proces je znázornený na Obrázku 4.



Obrázok 4 Formovanie rádioaerosólov [PORSTENDÖRFER, 1979]

Okrem tvorby klastrov, sa tieto rádionuklidy viažu na existujúce aerosólové častice v atmosfére už behom prvých 1-100 s [PORSTENDÖRFER, 1979]. Vzhľadom na hygroskopický charakter atmosférických aerosólov, distribúcia veľkostí rastie so zvyšujúcou sa relatívnou vlhkosťou, pričom najväčšia zmena nastáva pri 50% relatívnej vlhkosti. Teda podľa podmienok v atmosfére, sa horná hranica režimu akumulácie aerosólov mení s relatívnou vlhkosťou. Dokonca aj pri stálej relatívnej vlhkosti sa modálne prechodové body značne menia aj s teplotou [CLARKE, 1987]. Vplyv poveternostných faktorov nie je významný. Proces naviazania, sa zriedkavo vyskytuje pri nízkej koncentrácii častíc aká je vo vonkajšej atmosfére. Produkty premeny sú preto prevažne voľné, neviazané a neskôr deponované na zemskom povrchu, čo vedie k nerovnováhe medzi radónom a jeho produktami premeny. Štúdie tiež ukazujú, že viazaná frakcia rádionuklidov  $^{214}\text{Po}$  a  $^{214}\text{Bi}$  je menšia ako u ostatných produktov premeny. To je spôsobené tým, že následné beta-premeny  $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$  neuvolňujú dostatočné množstvo energie na odpojenie [AMRANE, 2014].

Rôzne rádionuklidy sa viažu na aerosóly rôznych veľkostí. *AMAD* pre  $^{210}\text{Pb}$  je rôzny, od 0,28 až 0,49  $\mu\text{m}$ . Pre krátko žijúce produkty premeny radónu a torónu, sa v literatúre všeobecne uvádza distribúcia veľkostí ako 12 – 19% v nukleačnom režime, 81 – 88 % v akumuláčnom režime, a žiadny ako hrubý aerosól. Aerodynamické rozloženie veľkosti aerosólov, bolo vyjadrené ako stredná hodnota aerodynamického priemeru častíc v akumuláčnom móde. Namerané hodnoty boli 332 nm ( $^{218}\text{Po}$ ), 347 nm ( $^{214}\text{Po}$ ), 421 nm ( $^{214}\text{Pb}$ ), 382 nm ( $^{212}\text{Po}$ ) a 421 nm ( $^{212}\text{Pb}$ ) [GRUNDEL a PORSTENDÖRFER, 2009]. Papastefanou [2009] určil veľkosti produktov premeny

od radónu a stredný aerodynamický priemer *AMAD* ktorý sa pohyboval od 0,10 do 0,37 $\mu\text{m}$  pre  $^{214}\text{Pb}$  a od 0,07 do 0,25  $\mu\text{m}$  pre  $^{212}\text{Pb}$ .

Distribúcia produktov premeny radónu v atmosfére je podobná ako distribúcia radónu, nakoľko je ich priamym prekurzorom. Transport krátko žijúcich produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  do vyšších vrstiev atmosféry je však obmedzený ich krátkou dobou života. Na druhej strane produkty premeny  $^{220}\text{Rn}$  sa môžu vďaka pomerne dlho žijúcemu  $^{212}\text{Pb}$  dostať až do výšky 10km [JACOBI, 1963]. Pohyb produktov premeny radónu v atmosfére súvisí s pohybom aerosólov, na ktoré sa produkty premeny po svojom vzniku viažu. Z atmosféry sú odstraňované suchou alebo mokrou depozíciou podobne ako aerosóly.

Najväčší podiel na ich odstraňovaní majú zrážky. Kvapky a kryštály ľadu sťahujú častice na zemský povrch. Tento proces je ovplyvnený veľkosťou kvapiek, intenzitou dažďa a efektivitou kolíznych zrážok medzi kvapkou a časticami aerosólu [SEINFELD a PANDIS, 2006]. Kolízne zrážky sú ovplyvnené Brownovým pohybom, ktorý s veľkosťou častice klesá a menšie častice ( $r < 0,2 \mu\text{m}$ ) sa vychytávajú, rýchlejšie. Vietor je ďalší faktor, ktorým sú aerosóly zo vzduchu odstraňované alebo rozptýlené. Pomerne silný vietor s rýchlosťou 5  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  lokálne znižuje koncentráciu aerosólov v atmosfére. Najmenšie a najľahšie častice sú silným vetrom rozptýlené. Najťažšie a najväčšie častice sú vetrom prenášané na kratšie vzdialenosti [HARRISON a kol., 2001].

Informácie o objemovej aktivite radónu a jeho produktov premeny, v spodnej vrstve atmosféry sú potrebné na lepšie pochopenie pozorovaných koncentrácií znečisťujúcich látok počas rôznych období. Variácie koncentrácie znečisťujúcich látok v ovzduší vykazujú podobný trend ako variácie objemovej aktivity produktov premeny radónu a súvisia so silou zdroja emisií a atmosférického riedenia. V mestských oblastiach, je nepravdepodobné, že by sa tieto faktory menili zo dňa na deň, preto môžeme povedať že koncentrácia znečisťujúcich látok je do značnej miery ovplyvnená výškou atmosférickej zmiešavacej vrstvy.

Koncentrácie znečisťujúcich látok (typicky sú pozorované častice s označením  $\text{PM}_{10}$ ,  $\text{PM}_{2,5}$ ) prekračujúce limitný prah sa často zaznamenávajú v dobe, kedy je premiešavanie v spodnej vrstve atmosféry najmenej intenzívne. Toto sa typicky pozoruje napr. pre koncentrácie častíc *particulate matter* (PM) v Pádskej nížine, kde

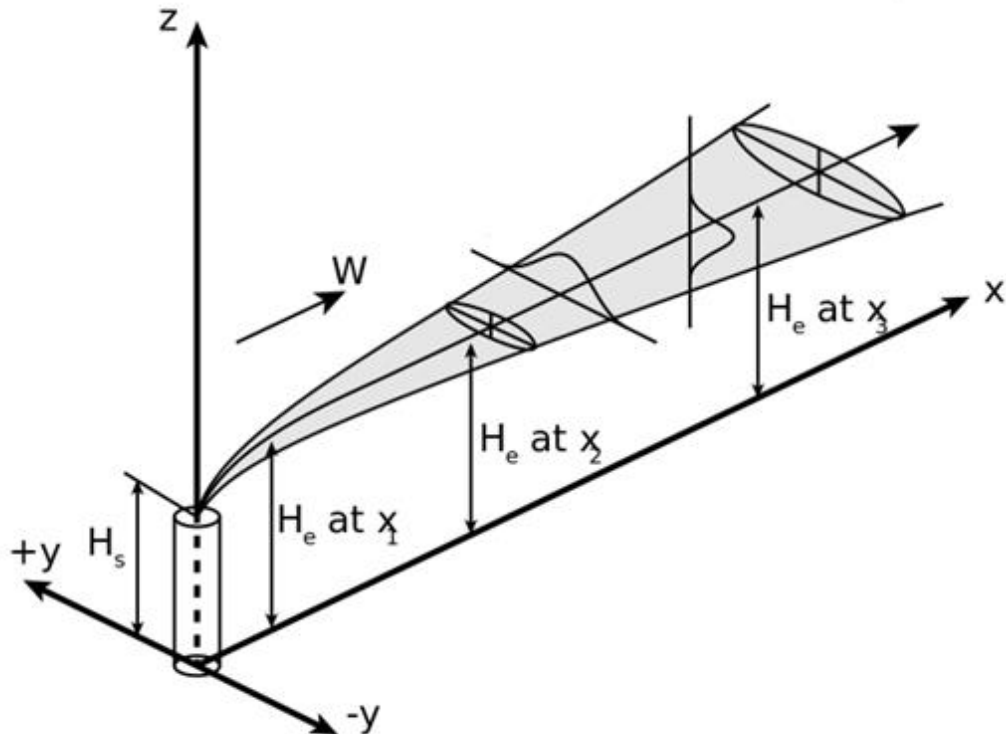


sa nachádza dobre známy *hot spot* v Európe. Na tomto mieste objemová aktivita radónu a jeho produktov premeny dosahuje počas slnečných dní minimálne hodnoty popoludní, kedy je premiešavanie v spodnej vrstvy atmosféry najintenzívnejšie a maximá v noci, alebo v skorých ranných hodinách, kedy môže dôjsť k teplotnej inverzii, čím sa podporuje stabilita atmosféry a akumulácia PM [VECCHI a kol., 2004; VECCHI a kol., 2009].

## 2.5 Aplikácie meraní radónu a jeho produktov premeny v atmosfére

### 2.5.1. Určovanie stability atmosféry

Keď uvažujeme o slove „stabilný“, zvyčajne si predstavujeme objekt alebo jav, ktorý sa pravdepodobne nezmení, alebo zostáva vyvážený. Opakom bude niečo, čo je „nestabilné“, neustále podstupujúce zmenu. Nestabilný objekt pravdepodobne časom spadne alebo zmení polohu. Rovnako môžeme rozmýšľať aj o atmosfére. Dôkaz o jej meniacich sa vlastnostiach môžeme vidieť už pri pohľade na oblaky, ktoré z minúty na minútu menia svoj tvar. Takéto oblaky sú v neustálom stave zmien, a teda predstavujú atmosféru v nestabilnom stave. Nestabilita v atmosfére je pojem, ktorý je úzko spojený s dennými a sezónnymi zmenami počasia a meteorologických faktorov a vertikálnym pohybom. Prečo je štúdium stability atmosféry dôležité? Pretože rozptyl znečisťujúcich látok úzko súvisí s atmosférickou stabilitou (znečisťujúce látky sú „zachytené“ v stabilných podmienkach a naopak, rýchlo sa rozptyľujú smerom nahor v nestabilných podmienkach). Klasifikácia stability je často založená na modelovaní a vizuálnych pozorovaniach rozptylu dymovej sviečky (Obrázok 5).



Obrázok 5 Model rozptylu dymovej sviečky, kde  $x, y$  a  $z$  sú súradnice,  $H_s$  je výška výpuste,  $H_e$  je efektívna výška výpuste, pre ktorú platí že:  $H_e = H_s + \Delta h$ , kde  $\Delta h$  je stúpanie oblaku.  $W$  je rýchlosť vetra [KHLAIFI, 2009].

Podľa Gaussovho modelu [KHLAIFI, 2009] je možné teoreticky určiť koncentráciu v bode so súradnicami (x, y, z) prislúchajúcich k zdroju umiestnenému v začiatku súradnicovej sústavy. Schematické znázornenie šírenia oblaku podľa Gaussovho modelu je uvedené na Obrázku 5. Možno si všimnúť, že os X sa mení so smerom vetra. Pre výpočet koncentrácie v referenčnom bode musia byť jeho súradnice najprv vyjadrené vo vzdialenostiach od zdroja po vetre a kolmom smere. Smer vetra je teda zohľadnený pri výpočte koncentrácie. Gaussovo rozdelenie určuje veľkosť oblaku v smere vetra od zdroja. Veľkosť oblaku závisí od stability atmosféry a rozptylu oblaku v horizontálnom a vertikálnom smere. Horizontálne a vertikálne disperzné koeficienty ( $\sigma_y$ , resp.  $\sigma_z$ ) sú vlastne štandardné odchýlky na Gaussovej distribučnej krivke v smere y, z a sú funkciami rýchlosti vetra, oblačnosti a zahrievania povrchu slnkom.

Výpočet disperzných koeficientov:

$$\sigma_y = \sqrt{2K_y \frac{x}{v}} \quad (7.)$$

$$\sigma_z = \sqrt{2K_z \frac{x}{v}} \quad (8.)$$

$K_x$ ,  $K_y$ ,  $K_z$  sú koeficienty turbulentnej difúzie, x, y, z vyjadrujú vzdialenosť po vetre od zdroja [m], vo vzdialenosti kolmej na smer vetra [m], nadmorská výška [m] a v je rýchlosť vetra

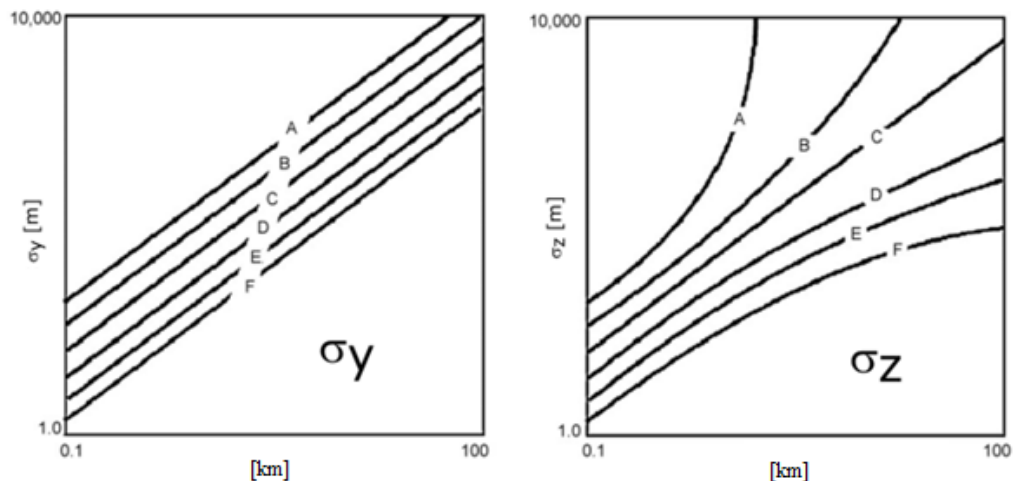
V prípade kontinuálneho zdroja znečisťujúcej látky  $q$  emitovanej vo výške  $h$  unášanej vetrom v smere osi x bude analytické riešenie pre stacionárne podmienky:

$$C = \frac{q}{2\pi\sigma_y\sigma_z v} e^{-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}} \left( e^{-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}} + e^{-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}} \right) \quad (9.)$$

Z Gaussovej disperzie znečisťujúcich látok tak vyplýva, že koncentrácia škodlivín bude závisieť od vzdialenosti od zdroja x a aktuálneho stavu atmosférickej

stability charakterizovanej turbulentnými difúznymi koeficientmi  $K_y$  a  $K_z$  (vyššia stabilita je charakterizovaná menšími hodnotami  $K_y$  a  $K_z$ , a naopak). Parametre  $\sigma_y$  a  $\sigma_z$  tiež závisia od výšky úniku znečisťujúcej látky - čím je táto výška vyššia, tým je nižšia turbulencia [HANNA, 1982, PASQUILL, 1983]. Členitosť terénu naopak intenzitu turbulencie zvyšuje.

Priebeh disperzných koeficientov  $\sigma_y$  a  $\sigma_z$  na Obrázku 6. ukazuje hodnoty, ktoré sa používajú v Gaussovom modeli pre horizontálny rozptyl znečisťujúcej látky v závislosti od rôznych tried stability a vzdialenosti. Horizontálne disperzné koeficienty  $\sigma_y$  rastú lineárne, vertikálne  $\sigma_z$  nelineárne.



Obrázok 6 Priebeh hodnôt disperzných koeficientov  $\sigma_y$  a  $\sigma_z$  v závislosti od triedy stability [Pasquill, 1974].

Indexy atmosférickej stability sú navrhnuté tak, aby čo najpresnejšie zhodnotili mieru vertikálneho premiešavania spôsobenú lokálnymi turbulentnými procesmi v atmosfére. Koncentrácia plynov a pevných častíc v atmosfére je funkciou intenzity ich emisie z príslušných zdrojov a rýchlosti ich odstraňovania rôznymi mechanizmami (suchá a mokrá depozícia a chemická premena in situ) a tiež vlastnosťami atmosféry [DUENAS a kol., 1996]. Intenzita premiešavania sa v priebehu dňa výrazne mení. Zvyčajne dosahuje maximálne hodnoty popoludní a minimálne hodnoty bezprostredne pred východom slnka. V najjednoduchšom prípade, počas bezoblačného dňa, je premiešavanie určené predovšetkým kombináciou turbulentných procesov (tepelnej

cirkulácie poháňanej solárnou energiou, ktorú spôsobuje zahrievanie zemského povrchu) a mechanickým premiešavaním, ktoré súvisí s rýchlosťou vetra. Jasnejšie pochopenie procesov, ktoré vedú k nárastu koncentrácie aerosólov v atmosfére, ako aj schopnosť kvantifikovať ich rozsah sú dôležité pre ohodnotenie potenciálnych zdravotných dopadov na obyvateľstvo.

Pasquill [1961, 1974] usúdil, že triedy atmosférickej stability je možné určovať aj nepriamo (bez merania rozptylu dymovej vlečky) a definoval ich tak, ako je uvedené v tabuľke 2. Jedná sa o prvý pokus o určenie atmosférickej stability pomocou parametrov bežne meraných na meteorologických staniciach (rýchlosť vetra, intenzita slnečného žiarenia počas dňa a oblačnosť počas noci).

Pasquillova klasifikácia atmosférickej stability bola následne modifikovaná Giffordom [1961], Turnerom [1967] a Briggsom [1973]. Vďaka svojej jednoduchosti sa Pasquillova metóda neustále široko využíva vo výskume kvality ovzdušia a v prognostických modeloch počítajúcich presun rádioaktívneho mraku pochádzajúceho z jadrových zariadení v prípade radiačnej udalosti alebo nehody [TURNER, 1997; HICKS a kol., 2016].

Stupne stability nie sú merateľné fyzikálne veličiny. Pasquillova metóda a jej modifikácie rozlišujú šesť tried atmosférickej stability, pričom tieto triedy sú funkciou nasledujúcich meteorologických parametrov: *intenzita slnečného žiarenia, rýchlosť vetra, oblačnosť*. Základná myšlienka pozostáva z určenia stupňa stability využívajúc miestne meteorologické údaje, ktoré charakterizujú rozptylové podmienky atmosféry [LUNA A CHURCH, 1972]. Stupne A-C, D a E-F predstavujú nestabilné, neutrálne a stabilné podmienky (Tabuľka 2). Niektorí autori [GIFFORD, 1961] pridali ešte jeden dodatočný stupeň G, ktorý sa vyskytuje pri slabom vetre počas noci.

Tabuľka 2 Pasquillova klasifikácia stupňov stability [Pasquill, 1961]

<b>A</b>	extrémne nestabilné podmienky
<b>B</b>	stredne nestabilné podmienky
<b>C</b>	mierne nestabilné podmienky
<b>D</b>	neutrálne podmienky
<b>E</b>	málo stabilné podmienky
<b>F</b>	stabilné podmienky

Silnejúci vietor posúva triedu stability smerom k neutrálnej počas dňa aj noci. Oblačnosť má podobný účinok. Teplo vyžarované oblakmi v noci znižuje ochladzovanie spodnej vrstvy atmosféry, a naopak pri výskyte dennej oblačnosti sa znižuje intenzita slnečného žiarenia dopadajúceho na zemský povrch [VENKATRAM, 1996].

Tabuľka 3 Kategórie stability atmosféry podľa Pasquilla [PASQUILL, 1961]

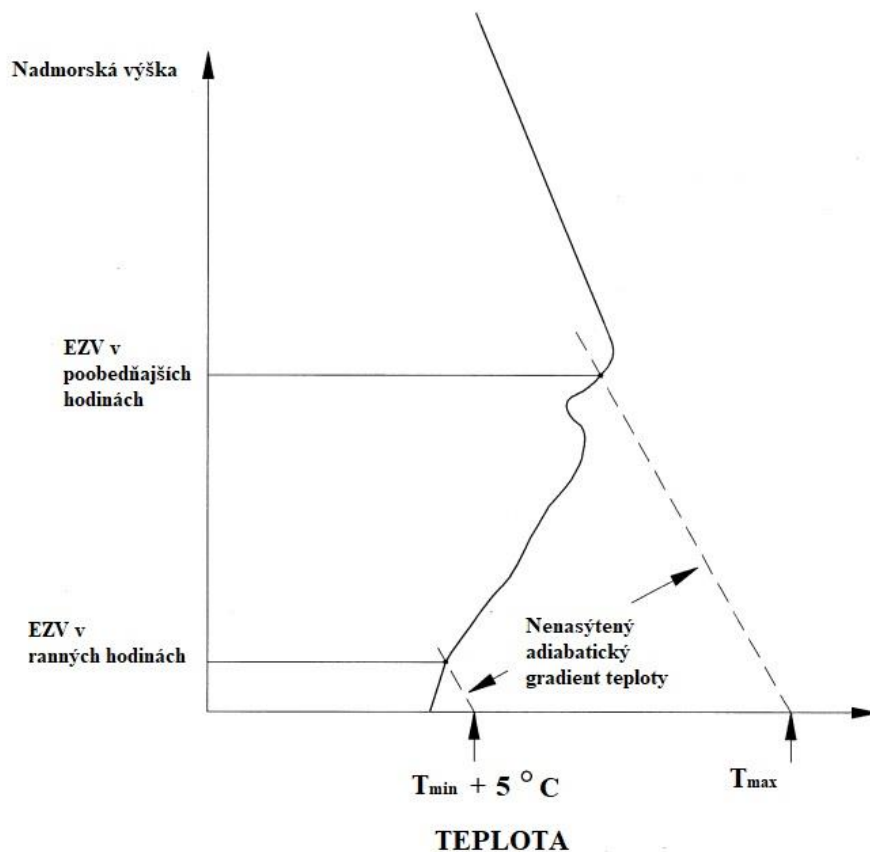
Rýchlosť vetra [m/s]	Intenzita slnečného žiarenia počas dňa			Oblačnosť v noci	
	Silná	Stredná	Slabá	> 4/8	<3/8
< 2	A	A - B	B	-	-
2 - 3	A - B	B	C	E	F
3 - 5	B	B - C	C	D	E
5 - 6	C	C - D	D	D	D
> 6	C	D	D	D	D

Pre modifikáciu Pasquillovej metódy môžeme nájsť niekoľko dôvodov. Bez ohľadu na rýchlosť vetra, pre zamračené podmienky počas dňa alebo noci a pre akékoľvek podmienky na oblohe. Hodinu pred východom alebo hodinu po západe slnka by sa mal predpokladať neutrálny stupeň D [TURNER, 1970]. Pasquillova metóda bola vyvinutá v Anglicku, kde je krajina rovinatá, suchá a trávnatá a nezohľadňuje rôznorodosť terénu. Nedôveryhodne preto môže pôsobiť rozdelenie stupňov A – C výhradne len počas dňa a stupňov E – F výhradne počas noci, najmä v členitom teréne, kde môžu na intenzitu premiešavania pôsobiť lokálne podmienky. Pasquill [1961] taktiež nešpecifikoval výšku, v ktorej má prebiehať meranie rýchlosti vetra. Na charakterizovanie vertikálnej stability počas dňa použil Pasquill iba intenzitu slnečného žiarenia a rýchlosť vetra. Nočné podmienky v atmosfére charakterizoval oblačnosťou a rýchlosťou vetra. Keďže Pasquill uvažoval o intenzite slnečného žiarenia len kvalitatívne a neriešil prípady zamračenej oblohy počas dňa a noci a taktiež nezvažoval prípad slabého vetra počas noci za jasného počasia, jeho metódu

modifikoval Polster [POLSTER, 1970]. Modifikáciu urobil aj Turner, ktorý vychádzal z Pasquillovej metódy určovania kategórií atmosférickej stability a zaviedol až sedem stupňov stability atmosféry [TURNER, 1964]. Z jeho metódy vyplýva, že pri vysokej kladnej hodnote indexu ožiarenia a pri nízkej rýchlosti vetra sa vyskytuje nestabilita. Naopak stabilita sa vyskytuje pri vysokej zápornej hodnote indexu ožiarenia a strednej rýchlosti vetra. Neutrálne podmienky pozorujeme pri vyššej oblačnosti a pri vysokej rýchlosti vetra.

### **2.5.2. Určovanie ekvivalentnej zmiešavacej výšky**

Mnoho bežných meteorologických procesov ovplyvňuje intenzitu premiešavania a teda priamo aj stabilitu atmosféry. Denné variácie slnečného cyklu a nočného ochladzovania, vytvárajú obdobia nestability a stability v atmosfére. Ako už bolo spomenuté, slnečné žiarenie počas dňa ohrieva zemský povrch, ktorý zase ohrieva vzduch pri povrchu zeme. Taký vzduch bude vďaka vztlakovým silám stúpať, až kým nedosiahne výšku, v ktorej bude kondenzovať. Táto výška sa nazýva ekvivalentná zmiešavacia výška (ďalej označovaná aj ako EZV alebo  $h_e$ ), medzi touto výškou a zemou leží vrstva vzduch (často nazývaná prízemná vrstva), ktorá napomáha atmosférickému miešaniu vztlakom. Odhad EZV za použitia gradientu teploty sa dá nakresliť nasledovne:



Obrázok 7 Vzťah medzi gradientom teploty a EZV [HEMOND a FECHNER, 2015] .

Ekvivalentná zmiešavacia výška sa dá odhadnúť nakreslením čiary vychádzajúcej z teploty na povrchu a prekrývajúcej sa s nenasýteným adiabatickým gradientom teploty. Bod pretnutia čiary s teplotným profilom sa približuje skutočnej EZV. Nenasýtený adiabatický gradient teploty v tomto prípade vyjadruje zmenu teploty pri zmene výšky. Pri výstupe sa daný objem plynu bude vplyvom menšieho tlaku okolia rozpínať, čím vykoná prácu na úkor úbytku svojej vnútornej energie čo sa prejavuje ako pokles teploty. Túto zmenu vyjadruje nenasýtený adiabatický gradient teploty ktorý je definovaný ako: „zmena teploty suchého objemu plynu, alebo plynu, pri ktorom nenastal stav nasýtenia vodnými parami.“ Ak je pri tom uvažovaný objem plynu tepelne izolovaný od okolia, čo je pre adiabatický dej predpokladom, hodnota nenasýteného adiabatického gradientu teploty je [HEMOND a FECHNER, 2015]:

$$1 \text{ °C} / 100 \text{ m}$$



Ochladzovanie zemského povrchu počas noci znižuje teplotu vzduchu v prízemnej vrstve a znižuje intenzitu premiešavania. V mnohých prípadoch sa vytvára inverzia, čo je vrstva atmosféry, v ktorej sa vzduch s rastúcou nadmorskou výškou otepľuje. Nočná inverzia je pozorovateľná, keď je jasná nočná obloha, ktorá vyžaruje málo tepelného žiarenia smerom nadol aby sa vyrovnali straty tepla. Toto predstavuje výnimočne stabilnú situáciu. Nočné inverzie zachytávajú znečisťujúce látky v relatívne tenkej vrstve atmosféry a vedú k zníženiu kvality ovzdušia v blízkosti zemského povrchu [BOUBEL a kol., 1994].

V literatúre môžeme nájsť niekoľko prác [SESANA a kol., 2003; CHAMBERS a kol., 2015a,b; SALZANO a kol., 2016], ktoré dokázali, že merania objemovej aktivity radónu a jeho produktov premeny, sú účinné pri sledovaní zmien atmosférickej disperzie v spodnej vrstve atmosféry.

Ako už bolo spomenuté, radón v plynnom skupenstve sa zo zeme uvoľňuje a exhalačná jeho rýchlosť sa v priestore a čase mení [PORSTENDÖRFER, 1994]. Aj krátka doba pol premeny ( $T_{1/2} = 3,82$  d) je vhodná pre časový rozsah atmosférických procesov, ktoré sú skúmané. Jeho fyzikálne vlastnosti robia radón a jeho produkty premeny vhodnými prírodnými indikátormi podmienok miešania v spodnej atmosfére. Navyše, variácie objemovej aktivity radónu v dôsledku zmien exhalačnej rýchlosti sú menej významné ako tie, ktoré sú spôsobené miešaním atmosféry. Tieto odchýlky v exhalačných rýchlostiach sa stanú nezanedbateľnými iba pri extrémnych poveternostných podmienkach, silnom daždi, snehu, alebo pri zamrznutí pôdy [DUENAS a FERNANDEZ, 1987; PORSTENDÖRFER, 1994].

Denný cyklus zahrievania zemského povrchu Slnkom a nočného ochladzovania výrazne ovplyvňuje stabilitu spodnej vrstvy atmosféry. Denný cyklus a variácie objemovej aktivity radónu boli bližšie predstavené oddiely 2.4.2. Keď sa však pozrieme na ich vzťah k zmiešavacej výške, a procesom v atmosfére, môžeme povedať že typická radónová denná vlna dosahuje maximum, po nočnej akumulácii, v skorých ranných hodinách medzi 05:00 – 07:00. Po východe slnka sa vzduch pri zemi ohrieva otepľujúcim sa zemským povrchom. Tento vzduch stúpa vzlakom, čo vedie k narušeniu vrstvy vzduchu naakumulovanej počas noci. V spodnej časti atmosféry tak vznikne vrstva vzduchu v ktorej je vzduch dobre premiešaný.

Ako solárny ohrev pokračuje, táto zmiešaná vrstva konečne dosiahne výšku, v ktorej je atmosféra dostatočne stabilná na potlačenie ďalšieho miešania smerom nahor. Táto výška je zmiešavacia výška a vzduch pod touto výškou sa nazýva zmiešavacia

vrstva. Radónová vlna dosahuje minimum keď je EZV dostatočne vybudovaná a prevládajú procesy vertikálneho premiešavania., v poobedných hodinách medzi 16:00 – 18:00.

V noci ochladzovanie zemskeho povrchu znižuje teplotu vzduchu v blízkosti zeme, čím sa vytvára stabilná hraničná vrstva, nazývaná aj nočná hraničná vrstva. Vrstva vzduchu nad nočnou hraničnou vrstvou, niekedy nazývaná zvyšková vrstva, bola súčasťou zmiešavacej vrstvy počas dňa, ale v noci pozostáva zo vzduchu takmer neutrálnej stability s nízkou turbulenciou v dôsledku absencie solárneho ohrevu zeme.

### **Box Model**

Ekvivalentná zmiešavacia výška (ďalej označovaná aj ako EZV alebo  $h_e$ ) je parameter, pomocou ktorého je možné kvantitatívne ohodnotiť rozptylové podmienky v atmosfére. Je to zároveň dôležitá premenná pri modelovaní atmosférických procesov založených na tzv. krabicových (box) modeloch. Každý takýto model narába s výškou myšleného boxu a jedným z možných spôsobov vyjadrenia tejto výšky je práve EZV. Pojem EZV zaviedol Fontan a kol. [1979], neskôr bola táto problematika prepracovaná autormi Marcazzana a Persica [1997] a Sesana a kol. [2003], ktorý vylepšili pôvodný box model od Fontana et al., 1979, berúc do úvahy príspevok radónu z atmosférickej zvyškovej vrstvy, ako nedávno uviedli aj iní autori [GRIFFITHS a kol., 2013; SALZANO a kol., 2016]. V skutočnosti sa zvyšková vrstva tvorí až neskoro popoludní, keď EZV začína klesať. Objemová aktivita radónu existujúca v čase, keď sa zvyšková vrstva formuje, môže byť odstránená iba prirodzeným rozpadom. Vzhľadom na svoju dobu pol premeny, môže  $^{222}\text{Rn}$  pretrvávajúť vo zvyškovej vrstve až do nasledujúceho dňa, keď EZV zase narastá, a musí ku nej byť započítaný vzduch z hraničnej vrstvy.

### **Fontanov model**

Pojem ekvivalentná zmiešavacia výška možno vysvetliť ako takú výšku, ktorú by mal stĺpec vzduchu, keby v ňom bol radón homogénne rozptýlený a keby bola jeho koncentrácia taká istá, ako je pri povrchu zeme. Je to parameter ktorý umožňuje ohodnotiť vertikálnu stabilitu atmosféry pomocou meranie objemovej aktivity radónu v prízemnej vrstve. Fontan [1976] navrhol model na výpočet EZV ktorý je založený na hromadení  $^{222}\text{Rn}$  v akumuláčnej nádobe ktorej výšku poznáme, pričom vychádzame z predpokladu, že:

- rýchlosť, ktorou sa  $^{222}\text{Rn}$  z pôdy exhaluje je konštantná
- horizontálny pohyb vzdušnej masy zanedbávame
- radón je v zmiešavacej vrstve homogénne premiešaný

Keď berieme do úvahy všetky tieto predpoklady, tak EZV  $h_e$  medzi dvoma po sebe idúcimi intervalmi vypočítame podľa vzťahu [FONTAN, 1976]:

$$h_e(t) = \frac{E_{s,Rn}}{A_{Rn}(t) - A_{Rn}(t_0)} \Delta t \quad (10.)$$

Kde:

$A(t)$	je objemová aktivita $^{222}\text{Rn}$ v čase $t$
$A(t_0)$	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 $t$

### Model Sesana a kol.:

Sesana a kol. vzali do úvahy Fontanov box model a , pričom vychádzame z predpokladu, že:

- rýchlosť, ktorou sa  $^{222}\text{Rn}$  z pôdy exhaluje je konštantná
- horizontálny pohyb vzdušnej masy zanedbávame
- radón je v zmiešavacej vrstve homogénne premiešaný
- radón vo zvyškovej vrstve zakonzervovaný

Berúc toto do úvahy, dostávame hodnotu  $h_e$  medzi dvoma časovými intervalmi  $\Delta t$ . Pre obdobie kedy EZV klesá  $\Delta t(h_{i+1} < h_i)$ :

$$h_{i+1} = \frac{\phi(1 - e^{-\lambda\Delta t})}{\lambda(C_{i+1} - C_i e^{-\lambda\Delta t})} \quad (11.)$$

Kde:

- $\phi$  exhalačná rýchlosť [Bq·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>],
- $\lambda$  radónová premenová konštanta [h<sup>-1</sup>],
- $h_i$  EZV v čase  $i$  [m]
- $h_{i+1}$  EZV v čase  $i + \Delta t$  [m],
- $C_i$  objemová aktivita radónu v čase  $i$  [Bq·m<sup>-3</sup>]
- $C_{i+1}$  objemová aktivita radónu v čase  $i + \Delta t$  [Bq·m<sup>-3</sup>]
- $\Delta t$  1,2,3 h

Ak je hodinový nárast koncentrácie radónu z minima popoludní na maximum nasledujúce ráno pravidelný, výšku na celú noc možno vypočítať takto:

$$h_e = \frac{\phi(1 - e^{-\lambda\Delta t})}{\lambda(C_{\max} - C_{\min}e^{-\lambda\Delta t})} \quad (12.)$$

- $C_{\max}$  maximálna objemová aktivita radónu v čase [Bq·m<sup>-3</sup>];
- $C_{\min}$  minimálna objemová aktivita radónu v čase [Bq·m<sup>-3</sup>];
- $\Delta t$  interval medzi minimom a maximom.

Pre obdobie kedy EZV narastá  $\Delta t(h_{i+1} > h_i)$ :

$$h_{i+1} = \frac{\frac{\phi(1 - e^{-\lambda\Delta t})}{\lambda} + h_i C_i e^{-\lambda\Delta t} - h_i C_R^*}{C_{i+1} - C_R^*} \quad (13.)$$

kde  $C_R^*$  označuje objemovú aktivitu prítomnú v zvyškovej vrstve v čase  $i+1$  (berúc do úvahy rádioaktívny rozpad).

### 2.5.3. Rovnovážny faktor

V uzavretom objeme obsahujúcom radón po istej dobe nastáva rádioaktívna rovnováha medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátko žijúcimi dcérskymi produktmi. Rovnovážne faktory dcérskych produktov pritom budú rovné 1. Tento princíp sa využíva napríklad pri meraní objemovej aktivity radónu pomocou Lucasovej komôrky. V otvorenom priestore, akým je napríklad pobytový priestor, rádioaktívna rovnováha nenastáva a hodnota rovnovážnych faktorov je menšia ako 1.

Rovnovážny faktor je parameter pomocou ktorého charakterizujeme úroveň rovnováhy medzi radónom a jeho produktmi premeny. Je definovaný ako pomer ekvivalentnej objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  k jeho objemovej aktivite [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ], inými slovami, pomer potenciálnej koncentrácie alfa energie pre skutočnú zmes dcérskych produktov rozpadu radónu s tým, ktorý by sa uplatnil pri rádioaktívnej rovnováhe [ICRP, 2014]:

$$F = \frac{A_{\text{ekv,Rn222}}}{A_{\text{Rn}}} \quad (14.)$$

kde ekvivalentná objemová aktivita [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ] bude:

$$A_{\text{ekv,Rn222}} = \frac{\sum_i A_i \frac{e_{\alpha,i}}{\lambda_i}}{\sum_i \frac{e_{\alpha,i}}{\lambda_i}} \quad (15.)$$

Indexom  $i$  označujeme krátko žijúci produkt premeny  $^{222}\text{Rn}$  ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ),  $e_{\alpha,i}$  je latentná energia atómu,  $A_i$  objemová aktivita a  $\lambda_i$  konštanta premeny. Ekvivalentná objemová aktivita je vážený aritmetický priemer objemových aktivít krátkožijúcich produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$ .

Latentná energia jednotlivých atómov bude súčet všetkých energií alfa častíc, ktoré budú emitované premenou dcérskych produktov radónu až po vznik stabilného olova  $^{210}\text{Pb}$ . Rovnica pre ekvivalentnú objemovú aktivitu radónu bude mať tvar [UNSCEAR, 2000, s. 103]:

$$A_{\text{ekv,Rn222}} = 0,105 \cdot A_{\text{Po218}} + 0,515 \cdot A_{\text{Pb214}} + 0,380 \cdot A_{\text{Bi214}} \quad (16.)$$

Rovnica pre výpočet ekvivalentnej objemovej aktivity pre torón sa bude počítať rovnako a bude mať tvar [UNSCEAR, 2000, s. 103]:

$$A_{\text{ekv,Rn220}} = 0,913 \cdot A_{\text{Pb212}} + 0,087 \cdot A_{\text{Bi212}} \quad (17.)$$

Hodnota rovnovážneho faktora  $^{222}\text{Rn}$  sa v priebehu dňa mení. Objemové aktivity radónu vo vonkajšej atmosfére sú ovplyvnené nielen mierou exhalácie v danej oblasti. Zmenou atmosférických podmienok sa v priebehu dňa mení intenzita vertikálneho premiešavania vzduchu, čo vedie k nárastu koncentrácie čerstvého radónu (bez produktov premeny) v prízemných vrstvách atmosféry. Toto má za následok pokles rádioaktívnej rovnováhy medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho produktami premeny. Vonkajšia atmosféra sa môže líšiť od jedného miesta k druhému a je tiež ovplyvnená ročným obdobím a dennými variáciami. To má za následok pokles rádioaktívnej rovnováhy medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho produktami premeny. Počas dňa preto môžeme pozorovať minimálne hodnoty rovnovážneho faktora  $^{222}\text{Rn}$  ( $\sim 0,4$ ), po západe slnka a behom noci je možné sledovať jeho nárast až na maximum ( $\sim 0,9$ ) [MALAKHOV a kol., 1966].

Pomer koncentrácií medzi radónom a jeho dcérskymi produktami v interiéri je do veľkej miery ovplyvnený ventiláciou, koncentráciou pevných častíc a deponovaním dcérskych produktov na povrchu tzv. *plate out* efekt. *Plate out* efekt preskúmal George a kol. [1983], ktorý sa venoval vzťahu medzi koncentráciou pevných častíc a procesu deponovania na steny ionizačnej komory a dokázal súvislosť medzi *plate out* efektom a koncentráciou pevných častíc vo vnútornej atmosfére a našiel vzťah medzi objemovou aktivitou ovzdušia a *plate out* efektom. Wicke a Porstendörfer [1981] testovali depozičné procesy na stenách a nábytku v uzavretej a utesnenej miestnosti. Zistili, že rýchlosť depozície je približne  $0,2 \text{ h}^{-1}$  v závislosti od veľkosti miestnosti a koncentrácie pevných častíc. Z ich výsledkov vychádza že stredná hodnota rovnovážneho faktora v nemeckých rodinných domoch je  $\sim 0,3$ , v domoch s nižšou koncentráciou pevných častíc a až  $\sim 0,8$  v prašnejších domoch. Rôzne hodnoty rovnovážneho faktora môžeme tiež pozorovať aj vo vnútornej atmosfére. Rovnovážne

faktory pre  $^{222}\text{Rn}$  na pracoviskách a vo verejných budovách sa môžu líšiť od obytných budov. Je to spôsobené predovšetkým odlišným interiérom, environmentálnych podmienok vyžadovaných obyvateľmi a činnosťami, ktoré v takých pobytových priestoroch prebiehajú. V čistých priestoroch si dcérske produkty od radónu môžu len ťažko nájsť aerosólové častice, na ktoré by sa mohli naviazať [UNSCEAR, 2000].

Podobné merania autorov prebehli aj na iných kontinentoch. Khan a kol. [2012] analyzovali celkovo 138 príbytkov v Pakistane. Pre porovnanie  $F$ , bolo vybratých 98 príbytkov v ktorých žijú fajčiari a bežne túto činnosť vykonávajú v dome. 40 bolo z nefajčiarskeho prostredia. Stredné hodnoty  $F$  u fajčiarov boli  $0,49 \pm 0,08$  a  $0,40 \pm 0,07$  u nefajčiarov. Podobný experiment robili v Litovskom Vilniuse Jasaitis a Girgzdys [2013], ktorý tiež skúmali vplyv tabakového dymu na rovnovážny faktor vo vnútornej atmosfére. Zistilo sa že so zvyšujúcou sa koncentráciou aerosólových častíc sa zvyšuje  $F$  vo vzduchu. Pozitívna korelácia ( $R^2 = 0,9$ ) bola pozorovaná medzi  $F$  a koncentráciou aerosólových častíc vo vnútornej atmosfére.

Aj kvalita vzduchu ovplyvňuje rovnovážny faktor vo vnútornej atmosfére. Hou a kol. [2015] vykonali opakované merania na štúdium vplyvu smogu a hmly na  $F$  v centre a na predmestí Pekingu v Číne s použitím kontinuálneho detektoru radónu. Výsledky ukázali koreláciu medzi koncentráciou pevných častíc s priemerom menším ako 2,5 mm ( $\text{PM}_{2,5}$ ) a  $F$  vo vnútornej atmosfére ( $R^2 = 0,71$ ). Vplyv ventilácie je asi najvýznamnejší. V už spomínanej práci Wicke a Porstendörfer [1981] ukázali že s meniacou sa ventilačnou rýchlosťou od  $0,1 \sim 1,0 \text{ h}^{-1}$  sa meraný rovnovážny faktor menil v rozsahu 0,3 až 0,6, teda s narastajúcou rýchlosťou ventilácie klesal.

O tom že objemová aktivita radónu je ovplyvnená nie len exhalačnou rýchlosťou, ale aj mierou atmosférického premiešavania. Rovnako ako vo vnútornom aj vo vonkajšom prostredí, rovnovážny faktor  $F$  vykazuje rôzne hodnoty, v závislosti od miesta merania a typických sezónnych vplyvov. Na voľnom priestranstve sa hodnoty  $F$  výrazne líšia v závislosti od vplyvu meteorologických faktorov. Rozsah stredných hodnôt  $F$  v atmosfére sa pohybuje od 0,18 do 0,67 s priemernou hodnotou  $0,54 \pm 0,13$  a mediánom 0,57.

Winkler a kol. [2001] robili merania v nemeckom Neutherbergu, na mieste vzdialenom len 450 km od Bratislavy. Krajina je nížinatá a podnebie je mierne a podobné Bratislave. Autori pozorovali zvýšené hodnoty  $F$  popoludní, v čase

intenzívneho premiešavania, kedy dochádza k poklesu objemovej aktivity radónu a jeho produktov premeny. Stredná denná hodnota  $F$  nameraná v Neutherbergu sa pohybovala od 0,55 v nočných hodinách až 0,72 počas dňa.

Reprezentatívne merania v produktov premeny v prízemnej vrstve atmosféry boli dokonca vykonané aj na KJFB už v minulosti. V stanovení predprevádzkových objemových aktivít rádionuklidov v prízemnej vrstve atmosféry nameral Holý a kol. [2003] hodnoty  $F$ , ktoré nadobúdali koncom augusta a v septembri až dvojnásobné hodnoty ( $\approx 0,7$ ) ako v júli ( $\approx 0,35$ ), pričom priemerné hodnoty  $F$  pre celé sledované obdobie (4.7. – 20.9. 2003) sa pohybovali na úrovni 0,5. To je hodnota o 40 % nižšia ako hodnota  $F$  určená na základe meraní uskutočnených v decembri 2002 ( $F \approx 0,9$ ) [HOLÝ a kol., 2003].

Typické hodnoty rovnovážneho faktora vo vonkajšej atmosfére sú pre  $^{222}\text{Rn}$  od 0,5 po 0,7 (s rozpätím 0,2 až 1,0) [UNSCEAR, 2000]. Priemerná hodnota rovnovážneho faktora vo vnútornej atmosfére je pre  $^{222}\text{Rn}$  0,4 (s rozpätím 0,1 až 0,9) [UNSCEAR, 2008]. Typické hodnoty uvedené v UNSCEAR [2000,2008] sa používajú, ak nie je známy rovnovážny faktor, špecifický pre miestne prostredie alebo nie je dobre známy. Variabilita rovnovážneho faktora totiž môže byť viac ako  $\pm 50\%$ .

#### **2.5.4. Rezidenčný čas aerosólov**

V momente kedy do atmosféry vstúpi radón a jeho premenou začnú vznikať jeho produkty premeny, začnú spolu interagovať s aerosólmi na základe svojich fyzikálnych a chemických vlastností. Na sledovanie správania sa aerosólov v atmosfére je vhodné sledovať rezidenčný čas aerosólov (MRT, z anglického *Mean Residence Time*), ktorý udáva čas zotrvania aerosólov v atmosfére. Na odhad rezidenčného času aerosólov bolo vypracovaných niekoľko metód, ktoré využívajú rádionuklidy nachádzajúce sa v atmosfére, pretože tie sa zachytávajú zrážkami na aerosóly vo vzduchu a časom sú pomaly z atmosféry odstraňované. Práve proces odstraňovania rádionuklidov má významný vplyv na koncentráciu krátko a dlhožijúcich rádionuklidov v atmosfére. Podmienky pri ktorých sa rádionuklidy vymývajú z atmosféry budú iné na rôznych miestach sveta, kvôli rôznym meteorologickým podmienkam [BASKARAN, 2001].

Všetky izotopy nuklidov, sa okamžite po ich vzniku, nachádzajú v Aitkenovom móde jadier Potom čas potrebný na to aby častica, ktorá je po vzniku v Aitkenovom



móde, dosiahla veľkosť častíc, ktoré experimentálne pozorujeme, definuje sa ako čas zotrvania v atmosfére. Podľa teórie sekundárneho prírastu koncentrácie aerosólov sa nárast koncentrácie častíc zvyšuje so strednou rýchlosťou (MGR) kondenzáciou a koaguláciou [MCMURRY a WILSON, 1982]. Takže čas zotrvania  $\tau_R$  aerosólu možno vypočítať pomocou nasledujúcej rovnice, ktorú analyticky opísal Papastefanou a Ioannidou [1995]:

$$\tau_R = \frac{(AMAD)Stredná\ hodnota - (AMAD)Aitkenové\ jadro}{(MGR)} \quad (18.)$$

Kde MGR = the Mean Growth Rate (0,004-0,005  $\mu\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ ) a AMAD Aitkenového jadra = 0,015  $\mu\text{m}$  [NRC, 1979]. Nevýhodou tejto metódy sú jej nároky na vybavenie, ako je napríklad kaskádový impaktor, pomocou ktorého je možné pri odbere vzorky oddeliť častice na základe ich aerodynamického priemeru (AMAD). Uvažuje sa preto o využití iných metód založených na výpočte pomerov sledovaných izotopov.

Experimentálne údaje z meraní v atmosfére o dobe zotrvania aerosólov v atmosfére sa pohybujú v rozmedzí od niekoľkých dní až niekoľko týždňov. Najnižšie hodnoty vykazujú v nižšej troposfére [KRISTIANSEN et al., 2016; PAPASTEFANOU, 2006; SCHMALE a kol., 2011; WILLIAMS a kol., 2002]. Metódy na odhad MRT môžu zahrňovať sledovanie rádionuklidov, ktoré vznikajú kozmickým žiarením, ako napríklad kozmogénneho  $^7\text{Be}$  ( $T_{1/2} = 53,3\text{d}$ ) [SHAPIRO a FORBES-RESHA, 1976; WINKLER a kol., 1998], alebo môžeme sledovať dcérske produkty  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$ , ktoré neustále unikajú zo zemskej kôry do atmosféry. K nim patrí  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  a  $^{210}\text{Po}$  [[FRANCIS a kol., 1970; POET a kol., 1972; LAMBERT a kol., 1982, 1983; BASKARAN a SHAW, 2001]. Na odhadnutie rezidenčného času aerosólov v atmosfére je treba poznať aktivitu a pomer páru rádionuklidov. Ak chceme odhadnúť rezidenčný čas na základe rozpadových produktov  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{220}\text{Rn}$ , je nutné sledovať dvojicu rádionuklidov  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$  alebo  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ . V iných prípadoch je možné sledovať pomer  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ . Pri výbere metódy však treba zohľadniť, že hodnoty MRT pri meraní aktivít  $^7\text{Be}$ , budú zodpovedať stavu vo vyššej oblasti atmosféry a produkty premeny radónu zase nižšej troposfére.

Autori článku [PAPASTEFANOU, 2006] odhadli rezidenčný čas troposférických aerosólov pomocou pomeru aktivít dcérskych produktov radónu ( $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ ,

a  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ ) a podľa pomeru ( $^{222}\text{Rn}/^{210}\text{Pb}$ ). Rovnica, ktorú použili pre výpočet rezidenčného času pomocou pomeru  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$  má tvar:

$$\tau_R = \frac{1}{\lambda_{Bi}} \frac{(\lambda_{Bi}N_{Bi})/(\lambda_{Pb}N_{Pb})}{1 - (\lambda_{Bi}N_{Bi})/(\lambda_{Pb}N_{Pb})} \quad (19.)$$

Kde:

$\lambda_{Bi}N_{Bi}$  je aktivita  $^{210}\text{Bi}$  [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]

$\lambda_{Pb}N_{Pb}$  je aktivita  $^{210}\text{Pb}$  [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]

$\lambda_{Bi}$  je premenová konštanta  $^{210}\text{Bi}$  ( $\lambda_{Bi} = 0,138\text{d}^{-1}$ )

$\lambda_{Pb}$  je premenová konštanta  $^{210}\text{Pb}$  ( $\lambda_{Pb} = 8,5 \cdot 10^{-5}\text{d}^{-1}$ )

$N_{Pb}$  a  $N_{Bi}$  vyjadrujú koncentráciu (počet atómov v  $1\text{m}^{-3}$ )

Pri odvodení rovnice (16.) vychádzali z rovnice (17.) vyjadrujúcej produkciu a odstraňovanie rádionuklidov, pričom sa medzi nimi predpokladá rovnováha:

$$\frac{dN_{Bi}}{dt} = \lambda_{Pb}N_{Pb} - (\lambda_{Bi} + \lambda_R)N_{Bi} = 0 \quad (20.)$$

Kde  $\lambda_R = \frac{1}{\tau_R}$  je konštanta zahrňujúca všetky procesy odstraňovania aerosólov z atmosféry. Je prevrátenou hodnotou rezidenčného času.

Rovnaký prístup aplikovali na odhadnutie rezidenčného času aerosólov pomocou pomeru objemových aktivít  $^{222}\text{Rn}/^{210}\text{Pb}$ . Rovnica opisujúca výpočet rezidenčného cez tento pomer má tvar:

$$\tau = \frac{1}{\lambda_{Pb}} \frac{1}{(\lambda_{Rn}N_{Rn})/(\lambda_{Pb}N_{Pb}) - 1} \approx \frac{1}{\lambda_{Pb}} \frac{\lambda_{Pb}N_{Pb}}{\lambda_{Rn}N_{Rn}} \quad (21.)$$

Kde:  $\lambda_{Pb} = 8,5 \cdot 10^{-5} d^{-1}$  (pre  $^{210}Pb$ ) a platí že  $(\lambda_{Rn}N_{Rn})/(\lambda_{Pb}N_{Pb}) \gg 1$

Merania podľa ktorých Papastefau vypočítal rezidenčný čas aerosólov v troposfére boli uskutočnené v Oak Ridge (U.S.A.). Rezidenčný čas odhadnutý z pomerov  $^{210}Pb/^{210}Bi$  bol v rozmedzí 4,8 – 15,3d (priemerná hodnota 8,2d). Podobne ako Papastefau [2006] odhadol rezidenčný čas na základe pomeru aktivity  $^{222}Rn$  a  $^{210}Pb$  v atmosfére, aj Sýkora a kol. [2015], použili tento pomer pri svojich výpočtoch rezidenčného času aerosólov v atmosfére v Bratislave. Keďže  $^{210}Pb$  vzniká premenou  $^{214}Po$ , malo by dosiahnuť aktivitu materského rádionuklidu približne za 50 dní (keď predpokladáme že úbytok  $^{210}Pb$  je len v dôsledku jeho premeny). V skutočnosti však dochádza k jeho odstraňovaniu z atmosféry rôznymi procesmi (vlhká, suchá depozícia, vymývanie). Pri výpočte vychádzali z práce Baskaran a Shawn [2001] a dostali nasledujúcu rovnicu popisujúcu hromadenie  $^{210}Pb$  z  $^{222}Rn$ :

$$\frac{dN_{Pb}}{dt} = F \cdot \lambda_{Rn} \cdot N_{Rn} - \lambda_{Pb} \cdot N_{Pb} - \lambda_r \cdot N_{Pb},$$

(22.)

Kde:

$N_{Pb}$  je koncentrácia  $^{210}Pb$  v atmosfére

$N_{Rn}$  je koncentrácia  $^{222}Rn$  v atmosfére

$\lambda_{Rn}$  je premenová konštanta  $^{222}Rn$

$\lambda_{Pb}$  je premenová konštanta  $^{210}Pb$

$\lambda_r$  je konštanta vyjadrujúca odstraňovanie  $^{210}Pb$  z atmosféry

$F$  je rovnovážny faktor medzi  $^{210}Po$  a  $^{222}Rn$  v atmosfére

Ak sa predpokladá že objemová aktivita  $^{210}Pb$  je na začiatku rovná 0 a že rýchlosť s ktorou  $^{222}Rn$  vstupuje do atmosféry a jeho objemová aktivita v atmosfére sú konštantné, vtedy je možné objemovú aktivitu  $^{210}Pb$  vypočítať pomocou rovnice:

$$A_{Pb}(t) = F \cdot \frac{A_{Rn} \cdot \lambda_{Pb}}{\lambda_{Pb} + \lambda_r} \cdot (1 - e^{-(\lambda_{Pb} + \lambda_r) \cdot t})$$

(23.)

kde  $A_{Rn}$  a  $A_{Pb}$  sú objemové aktivity  $^{210}\text{Pb}$  a  $^{222}\text{Rn}$  v atmosfére.

Pre saturovaný stav platí:

$$A_{Pb} = F \cdot A_{Rn} \cdot \frac{\lambda_{Pb}}{\lambda_{Pb} + \lambda_r}$$

(24.)

Vzťah na výpočet konštanty vyjadrujúcej odstraňovanie  $^{210}\text{Pb}$  z atmosféry má tvar:

$$\lambda_r = \frac{F \cdot A_{Rn} \cdot \lambda_{Pb}}{A_{Pb}} - \lambda_{Pb}$$

(25.)

A z toho odvodili nasledovný vzťah pre výpočet rezidenčného času aerosólov v atmosfére:

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

(26.)

Konštanta odstraňovania  $^{210}\text{Pb}$  vypočítaná z pomeru objemových aktivít  $^{222}\text{Rn}/^{210}\text{Pb}$  rovnovážneho faktora  $F = 0,4$  [PORSTENDÖRFER a kol., 1991] má hodnotu  $\lambda_r = 2,6 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ . Z toho vypočítali že rezidenčný čas sa bude rovnať  $\tau = 4,5\text{d}$ . Vypočítaný rezidenčný čas je 3,6 krát väčší ako čas ktorý vypočítali z priemerných mesačných hodnôt pomeru  $^{214}\text{Pb}/^{210}\text{Pb}$  pre atmosféru nad Milánom [VECCCHI a kol., 2005].

### 3. 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  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcich produktov premeny. Hlavnými cieľmi práce sú:

1. Získanie a analýza dát o objemovej aktivite  $^{222}\text{Rn}$ . Cieľom je pokračovať v sledovaní dlhodobých zmien koncentrácie radónu v atmosfére a tiež niektorých parametrov atmosféry.
2. Štúdium správania sa rovnovážneho faktora F medzi objemovou aktivitou  $^{222}\text{Rn}$  a objemovými aktivitami jeho krátkožijúcich produktov premeny ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ) 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  $^{222}\text{Rn}$  a tiež pre výpočty rezidenčného času aerosólov v atmosfére na základe radónových dát.
3. Vývoj a postavenie vysokocitlivého kontinuálneho monitora objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  v atmosfére a tiež kompletizácia a spojzdenie monitora krátkožijúcich produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$ . uvedené detekčné systémy budú využité pre riešenie úloh 1 až 2.
4. Inštalácia meracích zariadení v areáli meteorologickej stanice, čím sa vytvorí jedno integrované pracovisko na výskum atmosferickej rádioaktivity na FMFI UK. V ďalšej časti práce sa budem podrobnejšie zaoberať stavom rozpracovania jednotlivých detekčných systémov.

## 4. Experimentálne metódy

### 4.1 Detekčné systémy pre meranie OAR na báze scintilačných komôr

Detekčné systémy využívajúce scintilačné komory, v ktorých sa realizuje registrácia alfa častíc na vnútorných stenách, sú najčastejšie sa využívané detektory. Veľkoobjemové scintilačné komory sú často riešené ako prietokové komory a sú vhodné pre prácu v kontinuálnom režime. Maloobjemové scintilačné komory, nazývané tiež Lucasove komôrky, sú využívané na bodové odbery vzoriek.

Scintilačnú komoru Lucasovho typu tvorí uzavretá nádoba, v ktorej je na vnútorné steny nanosená scintilačná látka. Detektor sa plní vzorkou spravidla nasatím vyšetrovaného vzduchu do evakuovanej komôrky cez aerosólový filter po otvorení zavzdušňovacieho ventilu. Po dosiahnutí rádioaktívnej rovnováhy medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcimi produktmi premeny, približne po 4 hodinách, sa komôrka pripojí k scintilačnej sonde a pomocou meracieho zariadenia sa registruje početnosť od vzorky.

Pri dopade alfa častice emitovanej pri premene radónu a jeho produktov premeny na scintilátor sa vyžiari fotón. Vyžiarené fotóny prechádzajú cez okienko na dne komory a vo fotonásobiči sú prevádzané na elektrický signál. Objemovú aktivitu radónu vypočítame z počtu zaregistrovaných impulzov [MULLEROVA, 2006].

$$A(t) = \frac{n_{vz} - n_p}{\varepsilon_d \cdot V} \cdot \frac{\lambda_{Rn} \cdot t_o}{1 - e^{-\lambda_{Rn} \cdot t_o}} \cdot e^{-\lambda_{Rn} \cdot t_{om}} \cdot \frac{\lambda_{Rn} \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda_{Rn} \cdot t_m}} \quad (27.)$$

kde

$n_{vz}$  je nameraná početnosť impulzov,

$n_p$  je početnosť pozadia,

$\varepsilon_d$  je detekčná účinnosť komôrky,

$V$  je objem komôrky,

$t_o$  je dĺžka odberu,

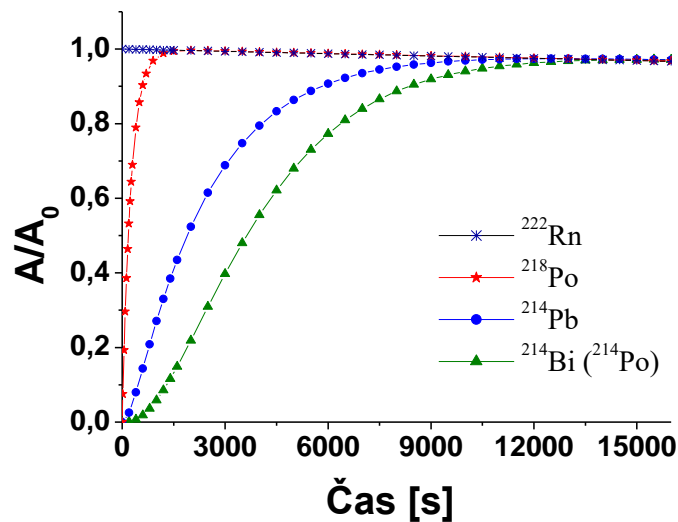
$t_{om}$  je doba od konca odberu do začiatku merania,

$t_m$  je dĺžka merania vzorky,

$\lambda_{Rn}$  je konštanta premeny radónu,

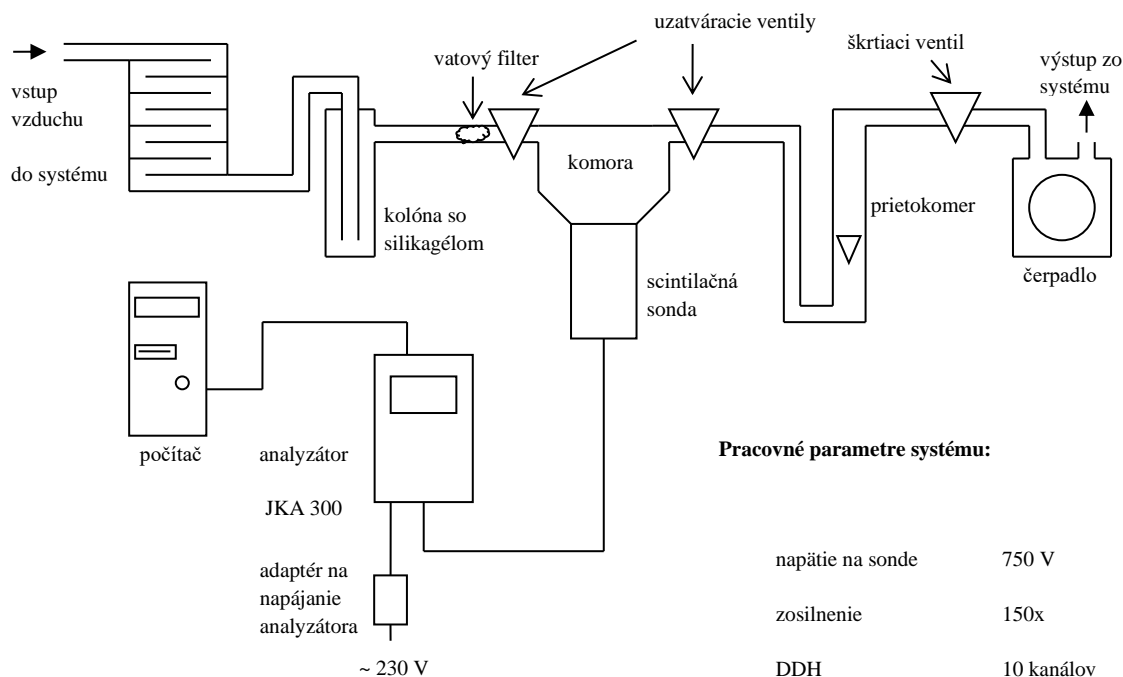
S použitím vzťahu (28.) dokážeme vypočítať nárast objemovej aktivity jednotlivých produktov premeny radónu v komore. Na obrázku 8. je zobrazený nárast objemových aktivít produktov premeny radónu v relatívnych jednotkách.

$$N_n = N_{01} \lambda_1 \dots \lambda_{n-1} \left[ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2 - \lambda_1) \dots (\lambda_n - \lambda_1)} + \dots + \frac{\exp(-\lambda_n t)}{(\lambda_1 - \lambda_n)(\lambda_2 - \lambda_n) \dots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} \right] \quad (28.)$$



Obrázok 8 Nárast objemovej aktivity produktov premeny radónu v uzavretej komore

Aj keď majú Lucasove komôrky široké využitie, na kontinuálne monitorovanie objemovej aktivity radónu vo vzduchu vo vonkajšej resp. vnútornej atmosfére, nie sú vhodné. Na tieto účely sa využívajú scintilačné komory pracujúce v prietokovom režime. Na obrázku 9. je zobrazená schéma kontinuálneho monitora radónu na báze scintilačnej komory, ktorý slúži ako referenčný monitor radónu na KJFB FMFI UK.



**Obrázok 9** Schéma kontinuálneho monitora radónu na báze scintilačnej komory

Do detektora je vzduch privádzaný cez 100m dlhú hadicu s vnútorným priemerom 5mm. Počas prechodu vzduchu hadicou sa z veľkej časti rozpadne prítomný torón. Pred tým ako vzduch vojde do komory, je zbavený vlhkosti v kolóne zo silikagélom a produktov premeny pri prechode vatovým filtrom. Prietok vzduchu je nastavený na  $0,5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$  a nasávaný vzduch sa tak v komore zdrží asi 2 minúty a potom pokračuje von cez prietokomer a čerpadlo. Požadovaný prietok môžeme nastaviť pomocou ventilu. Na stenách komory je vrstva scintilátora, v našom prípade je to ZnS(Ag), ktorý reaguje na dopad  $\alpha$  častice emitovaním svetelných zábleskov, ktoré vo fotonásobiči prevádzame na napäťový impulz. Zosilnenie a počítanie impulzov v nastavených oknách zabezpečuje analyzátor JKA300, ktorý slúži aj ako zdroj pracovného napätia pre scintilačnú sondu. Namerané dáta sú po každom intervale merania prenášané cez sériový port do osobného počítača pomocou softvéru dodaného s analyzátorom. Záznam počtu impulzov z komory je uskutočňovaný v 30 minútových intervaloch pri pracovnom napätí sondy 750 V, zosilnení 150x, integračnej konštante  $5 \mu\text{s}$  a dolnej diskriminačnej hranici analyzátoru 10



kanálov. Objemovú aktivitu radónu vyhodnocujeme v dvojhodinových intervaloch zo sumy impulzov v štyroch po sebe idúcich meracích intervalov.

Pri premene radónu vznikajú jeho produkty premeny. Produkty premeny ktoré vzniknú vo vnútri komory sa môžu zachytiť na jej stenách a pri svojej premene emitovať  $\alpha$  častice. Príspevok pochádzajúci od produktov premeny takto tvorí pozadie pri meraní alfa častíc radónu. Aby bolo možné presne vypočítať objemovú aktivitu radónu na základe počtu zaregistrovaných impulzov, je nutné zohľadniť príspevok jeho produktov premeny. Detekčný systém na báze scintilačnej komory sme kalibrovali Ward – Borakovou metódou [WARD a BORAK, 1991], ktorá spočíva v určení invertujúcich koeficientov, ktoré vyjadrujú odozvu detektora na radónový impulz. Pomocou týchto koeficientov môžeme vypočítať objemovú aktivitu radónu podľa vzťahu:

$$A_{Rn}(i) = \sum_{j=0}^n \tau_j \cdot N(i - j) \quad (29.)$$

kde:

$A_{Rn}(i)$  je objemová aktivita v intervale  $i$ ,

$N(i - j)$  je počet impulzov v intervale  $i$  a v predchádzajúcich intervaloch,

$\tau_j$  je  $j$ -ty invertujúci koeficient,

$n$  je počet predchádzajúcich intervalov, ktorých vplyv berieme do úvahy pri výpočte objemovej aktivity radónu.

Pri stanovení invertujúcich koeficientov vychádzame z odozvy detektora na etalónový radónový impulz trvajúci jeden merací interval. Následne cez komoru prečerpávame neaktívny vzduch a zaznamenávame počty impulzov v jednotlivých intervaloch. Postupom času klesne počet impulzov na nulu. Pozadie určíme ešte pred kalibráciou, prečerpávaním starého neaktívneho vzduchu cez systém.

Predelením odoziev monitora v jednotlivých intervaloch kalibrácie aktivitou radónového etalónu, dostaneme koeficienty odozvy detektora  $\Phi_0, \Phi_1, \Phi_2, \dots$ . Koeficient  $\Phi_0$  charakterizuje odozvu detektora na radónový impulz v intervale,

v ktorom tento impulz systémom prechádza,  $\Phi_l$  charakterizuje odozvu v intervale nasledujúcom atď. Úpravou vzťahu:

$$N(i) = \sum_{j=0}^n \varphi_j \cdot A_{Rn}(i - j) \quad (30.)$$

ktorý vyjadruje počet zaregistrovaných impulzov v intervale  $i$  ako sumu odoziev komory na radónové impulzy v predchádzajúcich intervaloch, prídeme k vyjadreniu invertujúcich koeficientov cez koeficienty odozvy:

$$\begin{aligned} \tau_0 &= \frac{1}{\varphi_0} \\ \tau_1 &= \tau_0(-\tau_0 \cdot \varphi_1) \\ \tau_2 &= \tau_0(-\tau_0 \cdot \varphi_2 - \tau_1 \cdot \varphi_1) \\ \tau_3 &= \tau_0(-\tau_0 \cdot \varphi_3 - \tau_1 \cdot \varphi_2 - \tau_2 \cdot \varphi_1) \\ &\downarrow \\ \tau_m &= \tau_0(-\tau_0 \cdot \varphi_m - \tau_1 \cdot \varphi_{m-1} - \dots - \tau_{m-1} \cdot \varphi_1) \quad . \end{aligned}$$

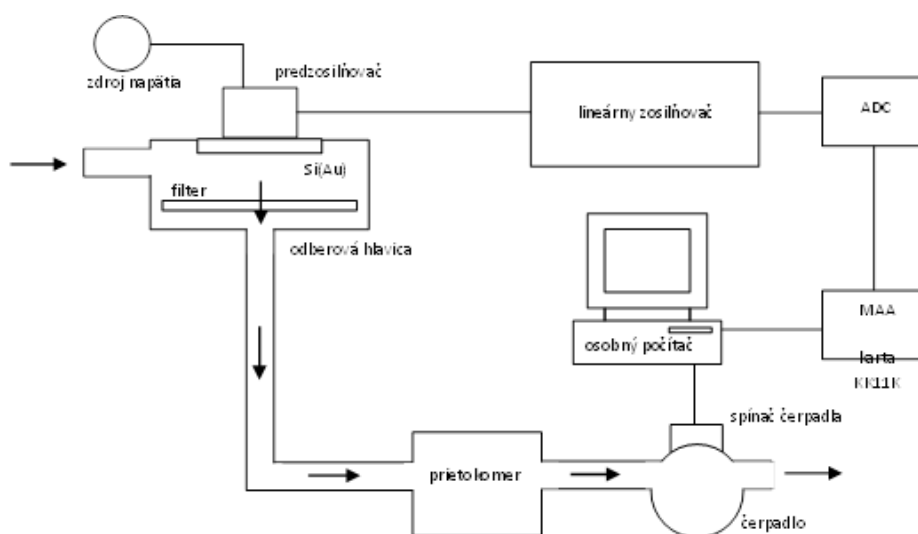
(28.)

**Tabuľka 4** Invertujúce koeficienty vypočítané pri kalibrácii Ward-Borakovou metódou

$\tau_0$	0,145348
$\tau_1$	0,145667
$\tau_2$	0,013407
$\tau_3$	-0,00813
$\tau_4$	-0,03175
$\tau_5$	0,049092

## 4.2. Detekčné systémy pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu

Pri premene radónu, respektíve torónu, vznikajú v atmosfére krátko žijúce izotopy polónia, bizmutu a olova a stávajú sa súčasťou aerosólov, ktoré sa nachádzajú v atmosfére. Pri presávaní známeho objemu vzduchu môžeme tieto produkty zachytiť na filtri a meraním aktivity filtra môžeme určiť objemovú aktivitu zachytených produktov. Schéma meracieho zariadenia zostrojeného na KJFB FMFI UK pre meranie objemových aktivít krátkožijúcich produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  ukázaná na Obrázku 10.



Obrázok 10 Schéma aparatury na meranie objemových aktivít produktov premeny radónu.

Filter je umiestnený vo vzdialenosti 4,5 mm pod polovodičovým detektorom s povrchovou bariérou. Signál z detektora je najprv zosilnený nábojovo citlivým predzosilňovačom, na elektronickej trase nasleduje lineárny zosilňovač a amplitúdovo-číselný prevodník s diskriminátorom. Výstup z prevodníku je napokon spracovávaný kartou KK11K v osobnom počítači PC-AT 386, kde v režime MS DOS beží program na obsluhu prerušení karty KK11K a na riadenie merania. Spektrá sú naberané vo zvolených intervaloch a ukladané v binárnom tvare na pevnom disku počítača v 256 kanáloch. Po ukončení merania sú spracované pomocou príslušnej matematickej metódy.

Tabuľka 5 Parametre elektronickej trasy

pracovné napätie detektora	150 V
zosilnenie <i>coarse</i>	128
zosilnenie <i>fine</i>	400
tvarovacia konštanta	2 $\mu$ s
derivačná konštanta	2 $\mu$ s
BLR-C <sub>c</sub>	10k $\Omega$
trim	601,5

Parametre elektronickej trasy sú uvedené v Tabuľke 5. Dolná diskriminačná hranica amplitúdovo-číselného prevodníka je nastavená na 18. kanál z 256, aby boli odrezané šumy. Na zachytenie produktov premeny radónu používame filtre RW19 firmy Millipore s priemerom 47 mm, hrúbkou 200  $\mu$ m a priemerom pórov do 1,2  $\mu$ m. Citlivá plocha polovodičového detektora je 450 mm<sup>2</sup>.

Pri meraniach využívame metódu Tsivoglou. Aktivita filtra so zachytenými produktmi premeny sa meria. Meranie je rozdelené do dvoch alebo troch časových intervalov, podľa toho, či chceme určiť koncentráciu len produktov premeny <sup>222</sup>Rn, alebo aj produktov premeny <sup>220</sup>Rn. Na základe analýz v práci [STANYŠ, 2002] sme ako prvý merací interval zvolili interval, počas ktorého bolo uskutočňované čerpanie vzduchu cez filter, a aktivitu filtra sme stanovovali spektrometricky, čo znižuje neistotu nameraných objemových aktivít. Merania sa uskutočňujú na tom istom filtri a zostatok jadier na filtri z predchádzajúceho merania je zohľadnený vo výpočte.

Hromadenie jadier <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>212</sup>Pb a <sup>212</sup>Bi na filtri počas čerpania popisujú rovnice:

$$\begin{aligned}
 dN_{Po218}^{\check{c}} &= (C_{Po218} \cdot v \cdot f - \lambda_{Po218} \cdot N_{Po218}^{\check{c}}) \cdot dt \\
 dN_{Pb214}^{\check{c}} &= (C_{Pb214} \cdot v \cdot f + \lambda_{Po218} \cdot N_{Po218}^{\check{c}} - \lambda_{Pb214} \cdot N_{Pb214}^{\check{c}}) \cdot dt \\
 dN_{Bi214}^{\check{c}} &= (C_{Bi214} \cdot v \cdot f + \lambda_{Pb214} \cdot N_{Pb214}^{\check{c}} - \lambda_{Bi214} \cdot N_{Bi214}^{\check{c}}) \cdot dt \\
 dN_{Pb212}^{\check{c}} &= (C_{Pb212} \cdot v \cdot f - \lambda_{Pb212} \cdot N_{Pb212}^{\check{c}}) \cdot dt \\
 dN_{Bi212}^{\check{c}} &= (C_{Bi212} \cdot v \cdot f + \lambda_{Pb212} \cdot N_{Pb212}^{\check{c}} - \lambda_{Bi212} \cdot N_{Bi212}^{\check{c}}) \cdot dt
 \end{aligned}
 \tag{32.}$$

kde

- $N_i^c$  je počet jadier produktu premeny  $i$  na filtri počas čerpania
- $C_i$  je koncentrácia produktu premeny  $i$  v prečerpávanom vzduchu [ $\text{m}^{-3}$ ]
- $P_i$  je počet jadier produktu premeny  $i$  na filtri na začiatku čerpania
- $v$  je rýchlosť čerpania vzduchu [ $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ]
- $f$  je účinnosť filtrácie
- $\lambda_i$  je konštanta premeny produktu premeny  $i$ .

Po ukončení čerpania premenu jadier na filtri popisujú rovnice:

$$\begin{aligned}
 dN_{Po218} &= -\lambda_{Po218} \cdot N_{Po218} \cdot dt \\
 dN_{Pb214} &= (\lambda_{Po218} \cdot N_{Po218} - \lambda_{Pb214} \cdot N_{Pb214}) \cdot dt \\
 dN_{Bi214} &= (\lambda_{Pb214} \cdot N_{Pb214} - \lambda_{Bi214} \cdot N_{Bi214}) \cdot dt \\
 dN_{Pb212} &= -\lambda_{Pb212} \cdot N_{Pb212} \cdot dt \\
 dN_{Bi212} &= (\lambda_{Pb212} \cdot N_{Pb212} - \lambda_{Bi212} \cdot N_{Bi212}) \cdot dt
 \end{aligned}$$

(33.)

s počiatočnými podmienkami:  $N_i(t = 0) = N_i^c(t = T_1)$ ,

kde  $N_i$  je počet jadier produktu premeny  $i$  na filtri

$T_1$  je doba čerpania [s].

Riešenia rovníc premeny jadier na filtri vstupujú do integrálnych rovníc na výpočet počtu zaregistrovaných  $\alpha$  častíc od  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$  a  $^{212}\text{Po}$ :

$$\begin{aligned}
A_{Po218}^{\check{c}} &= \int_0^{T_1} \varepsilon_{Po218} \cdot k \cdot \lambda_{Po218} \cdot N_{Po218}^{\check{c}}(t) dt \\
A_{Po214}^{\check{c}} &= \int_0^{T_1} \varepsilon_{Po214} \cdot k \cdot \lambda_{Bi214} \cdot N_{Bi214}^{\check{c}}(t) dt \\
A_{Po214} &= \int_0^{T_2} \varepsilon_{Po214} \cdot k \cdot \lambda_{Bi214} \cdot N_{Bi214}(t) dt \\
A_{Po212}^{(1)} &= 0,6406 \cdot \int_0^{T_2} \varepsilon_{Po212} \cdot k \cdot \lambda_{Bi212} \cdot N_{Bi212}(t) dt \\
A_{Po212}^{(2)} &= 0,6406 \cdot \int_{T_2}^{T_2+T_3} \varepsilon_{Po212} \cdot k \cdot \lambda_{Bi212} \cdot N_{Bi212}(t) dt
\end{aligned}
\tag{34.}$$

Kde:

$A_i$  sú počty zaregistrovaných  $\alpha$  častíc z premeny jadier  $i$

$\varepsilon_i$  sú účinnosti registrácie  $\alpha$  častíc z premeny jadier  $i$

$T_i$  sú dĺžky meracích intervalov [s]

$k$  je koeficient samo absorpcie  $\alpha$  častíc emitovaných z filtra.

Na prvých dvoch rovniciach je počet zaregistrovaných  $\alpha$  častíc od  $^{218}\text{Po}$  a  $^{214}\text{Po}$  počas čerpania. Tretia rovnica vyjadruje počet zaregistrovaných  $\alpha$  častíc od  $^{214}\text{Po}$  v druhom intervale merania a štvrtá a piata rovnica počet  $\alpha$  častíc od  $^{212}\text{Po}$  v druhom a treťom meracom intervale. Koeficient 0,6406 v posledných dvoch rovniciach je kvôli dvom možným spôsobom premeny jadier  $^{212}\text{Bi}$ . Po dosadení riešení vyššie uvedených rovníc do riešenia nasledujúcich rovníc a preintegrovaní podľa času dostaneme dve sústavy lineárnych rovníc, tri rovnice pre koncentrácie produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  a dve pre koncentrácie produktov premeny  $^{220}\text{Rn}$ :

$$\begin{aligned}
A_{Po218}^{\check{c}} &= a \cdot C_{Po218} + f_1(P_{Po218}) \\
A_{Po214}^{\check{c}} &= b \cdot C_{Po218} + c \cdot C_{Pb214} + d \cdot C_{Bi214} + f_2(P_{Po218}, P_{Pb214}, P_{Bi214}) \\
A_{Po214} &= e \cdot C_{Po218} + f \cdot C_{Pb214} + g \cdot C_{Bi214} + f_3(P_{Po218}, P_{Pb214}, P_{Bi214}) \\
A_{Po212}^{(1)} &= h \cdot C_{Pb212} + i \cdot C_{Bi212} + f_4(P_{Pb212}, P_{Bi212})
\end{aligned}$$

$$A_{Po212}^{(2)} = j \cdot C_{Pb212} + k \cdot C_{Bi212} + f_5(P_{Pb212}, P_{Bi212}), \quad (35.)$$

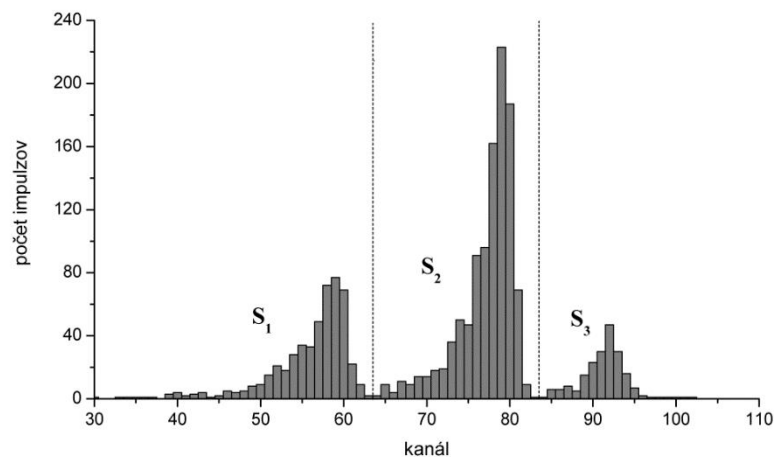
Kde:

$C_i$  sú hľadané neznáme koncentrácie produktov premeny v atmosfére

$a, b, \dots k$  sú koeficienty závisiace od dĺžky intervalov merania, účinnosti registrácie  $\alpha$  častíc a rýchlosti čerpania

$f_i$  sú funkcie počtu jadier produktov premeny na filtri na začiatku odberu

Podľa analýzy výsledkov dosiahnutých v prácach [STANYS, 1997; ŠEVČÍK, 2010] je vhodné nasledujúce nastavenie meracích intervalov. Prvý interval je nastavený na čas 20 minút počas ktorých je vzduch čerpaný. V prvom intervale meriame hlavne píky od  $^{218}\text{Po}$ . Druhý interval s dĺžkou 30 minút, už bez čerpania a dominuje v ňom aktivita  $^{214}\text{Po}$ . Tretí interval 70 minút, dopĺňa meranie do výsledného času 2. Výsledkom merania je spektrum troch  $\alpha$  píkov (obrázok 11.).



Obrázok 11 Príklad  $\alpha$  spektra produktov premeny radónu.

Prvý zľava je sumačný pík  $^{218}\text{Po}$  a  $^{212}\text{Bi}$ , ktorých energie 6,002 MeV a 6,051 MeV sa nedajú aparátúrou rozlíšiť. Ďalší pík je pík 7,687 MeV od  $\alpha$  častíc  $^{214}\text{Po}$  a posledný pík je pík  $^{212}\text{Po}$  s energiou 8,784 MeV. Plochy píkov boli rozdelené na tri

okná  $S_1$ ,  $S_2$  a  $S_3$  s hranicami 30. – 63. kanál, 64. – 83. kanál a 84. – 120. kanál, tak aby pík  $^{218}\text{Po}$  bol v prvom okne, pík  $^{214}\text{Po}$  v druhom okne a pík  $^{212}\text{Po}$  v treťom okne. Časť impulzov píku  $^{212}\text{Po}$  je zaregistrovaná v okne  $S_2$  a časť impulzov píku  $^{214}\text{Po}$  je registrovaná v okne  $S_1$ . Čisté plochy píkov je možné určiť z počtov impulzov v oknách takzvanou metódou plôch. Matematický zápis tejto metódy bude mať nasledujúcu podobu:

$$\begin{aligned} S_1 &= \alpha_{11} \cdot P_1 + \alpha_{12} \cdot P_2 + \alpha_{13} \cdot P_3 \\ S_2 &= \alpha_{21} \cdot P_1 + \alpha_{22} \cdot P_2 + \alpha_{23} \cdot P_3 \\ S_3 &= \alpha_{31} \cdot P_1 + \alpha_{32} \cdot P_2 + \alpha_{33} \cdot P_3, \end{aligned} \tag{36.}$$

kde  $P_i$  sú plochy píkov  $^{218}\text{Po}+^{212}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ,  $^{212}\text{Po}$

$S_i$  sú počty zaregistrovaných impulzov v oknách  $S_1$ ,  $S_2$  a  $S_3$

$\alpha_{ij}$  sú koeficienty vyjadrujúce aká časť píku  $j$  leží v oblasti  $S_i$ .

Pri splnení podmienky stabilnej polohy a tvaru píkov sú koeficienty  $\alpha_{ij}$  konštanty. Vyjadrenie pre čisté plochy píkov:

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_{11} & \alpha_{12} & \alpha_{13} \\ \alpha_{21} & \alpha_{22} & \alpha_{23} \\ \alpha_{31} & \alpha_{32} & \alpha_{33} \end{pmatrix}^{-1} \cdot \begin{pmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} \tag{37.}$$

Plochu píku  $^{218}\text{Po}$  vypočítame pomocou vzťahu:

$$P_{Po218} = P_1 - \frac{0,3594}{0,6406} P_3 \tag{38.}$$

kde 0,3594 je časť jadier  $^{212}\text{Bi}$ , ktoré sa premieňajú  $\alpha$  premenou a 0,6406 je časť jadier ktorá prechádza  $\beta$  premenou na  $^{212}\text{Po}$ . Týmto spôsobom z troch nameraných početností pre tri meracie intervaly vypočítame plochy píkov, ktoré dosadíme do rovníc na výpočet objemových aktivít produktov premeny radónu.



## 5. Výsledky a diskusia

### 5.1. Testovanie vo vnútornej atmosfére

Počas testovania vo vnútornej atmosfére sme mali k dispozícii komerčne dostupný detektor krátko žijúcich produktov premeny radónu, ktorý počas testovania slúžil ako referenčný monitor. Cieľom bolo overiť ako bude reagovať náš detekčný systém v porovnaní s komerčne dostupným detekčným systémom od firmy *Bertin Instruments*, detekčným systémom AlphaGUARD s prídavným príslušenstvom AlphaPM. AlphaPM je komerčne dostupný detekčný systém pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu v atmosfére. Meranie produktov premeny radónu prebieha paralelne s meraním objemovej aktivity radónu v hlavnej jednotke AlphaGUARD.

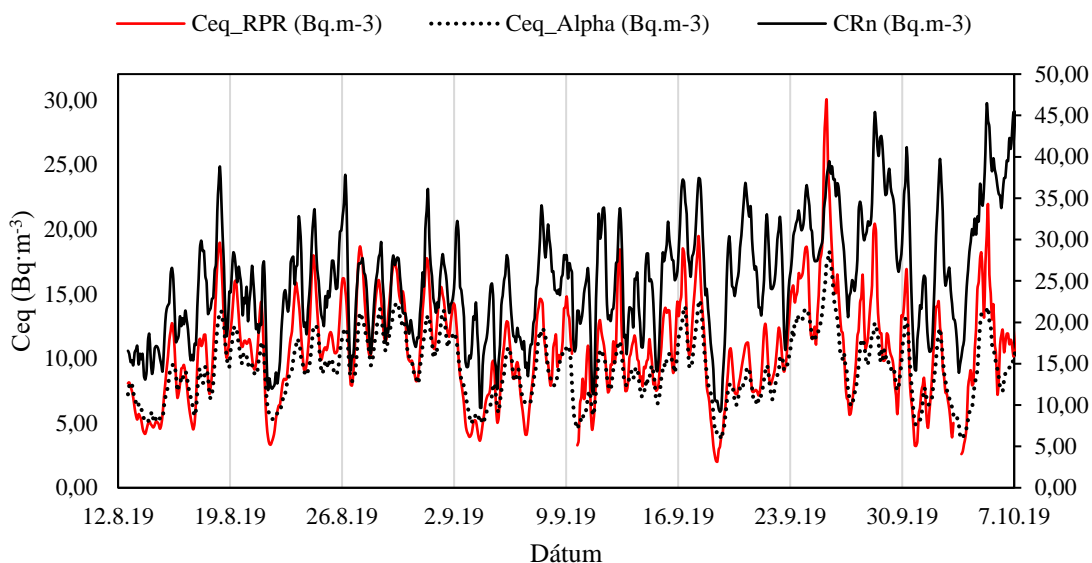


Obrázok 12 Detekčný systém pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu AlphaPM [Zdroj: [www.bertin-technologies.com/](http://www.bertin-technologies.com/)].

AlphaPM nasáva vzorky vzduchu, pričom produkty premeny sú zachytávané na filtri. Alfa aktivita sa vyhodnocuje pomocou kremíkového polovodičového detektora PIPS a výsledok sa prenáša do hlavnej jednotky AlphaGUARD, kde je uložený. Kumulované impulzy sa vyhodnocujú a prepočítavajú sa na príslušné jednotky (MeV/l, Bq/m<sup>3</sup> EEC, J/m<sup>3</sup>). Výsledok sa zobrazí a prenesie do jednotky AlphaGUARD, kde budú uložené spolu s ostatnými údajmi.

Paralelné meranie oboch detekčných systémov prebiehalo vo vnútornej atmosfére v období od 12.08.2019 do 07.10.2019 v laboratóriu 256. Namerané priebehy objemovej aktivity radónu a ekvivalentnej objemovej aktivity z oboch detekčných systémov sú zobrazené na Obrázku 13. Z priebehov je vidieť, že namerané výsledky ekvivalentných objemových aktivít sú v dobrej zhode. Odozva nášho

detekčného systému veľmi dobre kopíruje nárast aj pokles objemovej aktivity radónu počas celej doby merania.



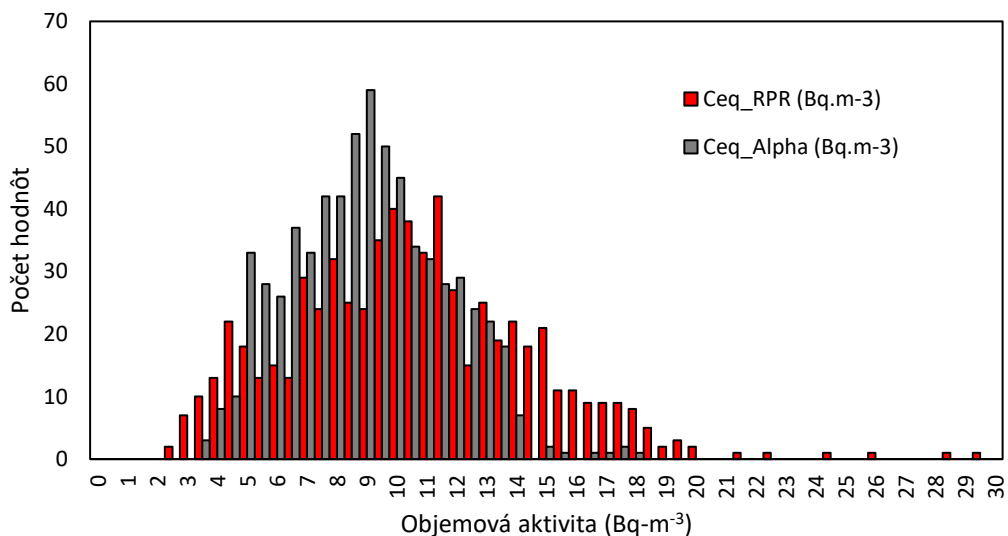
**Obrázok 13** Priebek objemovej aktivity radónu a priebek ekvivalentnej objemovej aktivity v laboratóriu F1 256 v období 12.08.2019 do 07.10.2019

Z nameraných priebehov je vidieť, že namerané výsledky ekvivalentných objemových aktivít sú v dobrej zhode. Odozva nášho detekčného systému veľmi dobre kopíruje nárast aj pokles objemovej aktivity radónu počas celej doby merania. Priemerná hodnota objemovej aktivity radónu nameraná v tomto období bola  $25,3 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , priemerné hodnoty ekvivalentnej objemovej aktivity z nášho detekčného systému boli na úrovni  $C_{\text{eq\_RPR}} = 10,69 \pm 4,08 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , a  $C_{\text{eq\_Alpha}} = 9,24 \pm 2,57 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Priebehy ekvivalentnej objemovej aktivity sú vzájomne vo veľmi dobrej zhode s korelačným koeficientom  $R^2 = 0,85$ .

**Tabuľka 6** Priemerné, minimálne a maximálne hodnoty objemovej aktivity radónu, ekvivalentnej objemovej aktivity a rovnovážneho faktora F v období 12.08.2019 do 07.10.2019.

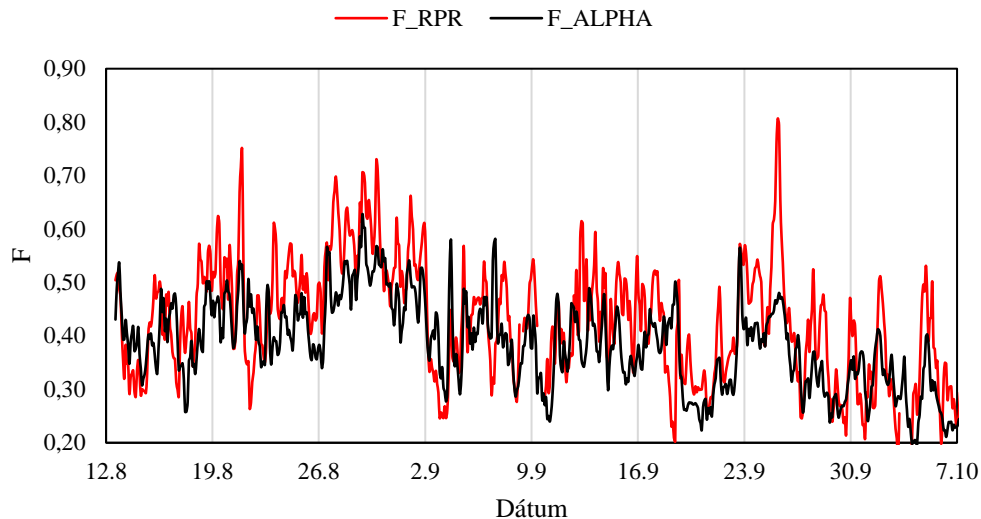
	$C_{\text{Rn}}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	$C_{\text{eq\_Alpha}}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	$C_{\text{eqRPR}}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	$F_{\text{ALPHA}}$	$F_{\text{RPR}}$
Priemer	25,3	9,24	10,69	0,39	0,43
MIN	9,20	3,75	2,03	0,20	0,17
MAX	46,37	18,30	29,88	0,63	0,81

Z porovnania priebehov na obrázku môžeme zhodnotiť, že výsledky meraní pre oba detektory sú v dobrej zhode. Korelačný faktor  $R^2$  je dokonca vyšší pre namerané priebehy  $C_{Rn} / C_{eq\_RPR}$  ( $R^2 = 0,49$ ) ako pre  $C_{Rn} / C_{eq\_Alpha}$  ( $R^2 = 0,45$ ). V celom priebehu môžeme pozorovať vyššie lokálne maximá namerané na našom detekčnom systéme oproti lokálnym maximám nameraných s AlphaPM. Na Obrázku 14 sú zobrazené početnosti hodnôt pre dané objemové aktivity. Systém AlphaPM počas merania zaznamenal gausovsky distribuované hodnoty v rozmedzí 3,5 – 18,5 Bq·m<sup>-3</sup>. Hodnoty, ktoré sme vypočítali z výsledkov meraní na našom detekčnom systéme boli v rozmedzí 2 – 20 Bq·m<sup>-3</sup>, keď do výpočtu nezahrieme jedno vysokočené lokálne maximum. Korelačný koeficient týchto dvoch priebehov  $R^2 = 0,59$ .



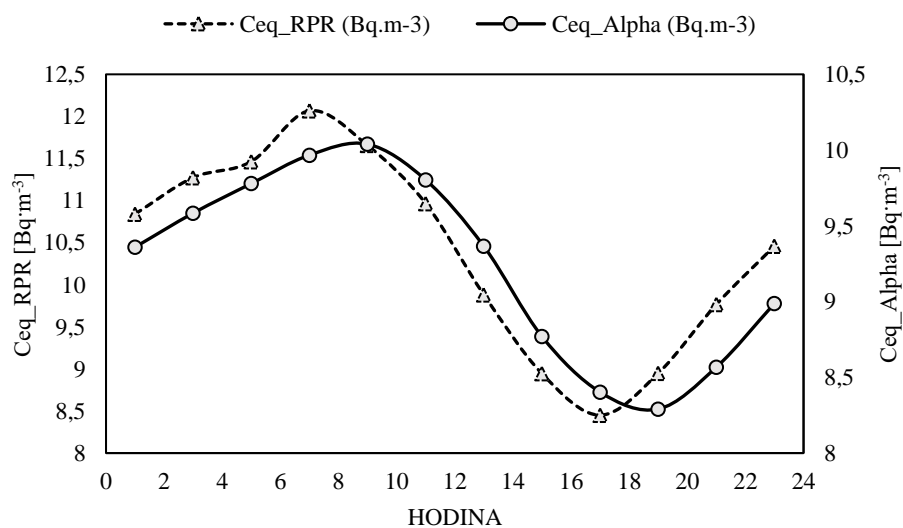
**Obrázok 14** Frekvenčné rozdelenie ekvivalentnej objemovej aktivity radónu z AlphaPM a nášho detekčného systému zo všetkých hodnôt v období 12.08. – 07.10.2019.

Konštatujeme, že priebehy hodnôt rovnovážneho faktora  $F$  vykazujú dobrú zhodu. Najväčšie rozdiely môžeme nájsť v čase, kedy pozorujeme nárast koncentrácie v lokálnych maximách. Priebehy  $F$  z nášho detekčného systému a AlphaPM navzájom korelujú s  $R^2 = 0,49$ .



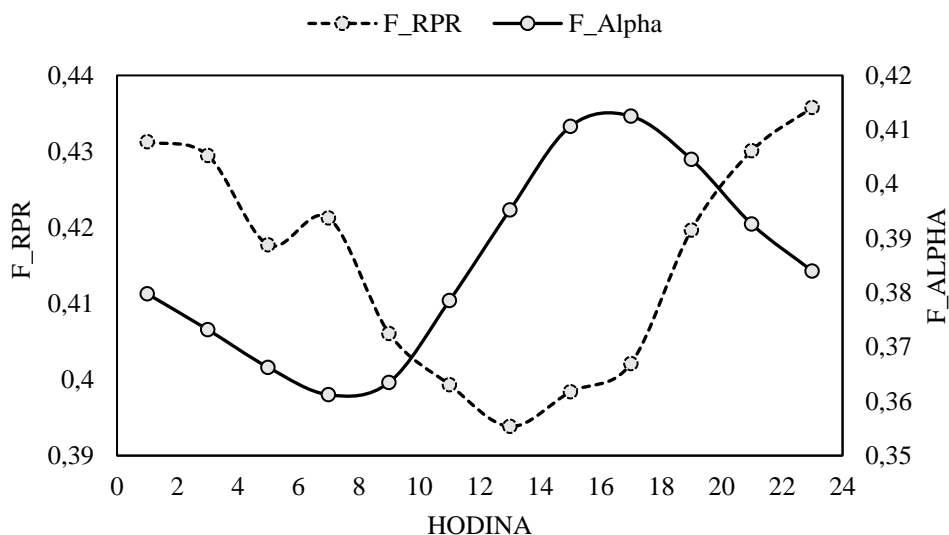
Obrázok 15 Priebehy rovnovážnych faktorov  $F$  v laboratóriu F1 256 v období 12.08.2019 do 07.10.2019.

Pri analýze stredných denných vln ekvivalentnej objemovej aktivity vo vnútornej atmosfére bola zistená korelácia  $R^2 = 0,85$ . Zároveň je možné vidieť nečakaný posun maximálnej hodnoty stredného denného priebehu. Hodnota  $A_{Max}$  nastáva pri našom detekčnom systéme o 07:00 a o 09:00 pri hodnotách z AlphaPM.  $A_{Min}$  je dosiahnutá pri našom detekčnom systéme o 17. hodine a o 2 h neskôr pri ekvivalentnej objemovej aktivite vypočítanej na AlphaPM (19:00).



Obrázok 16 Priemerný denný priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity z AlphaPM a nášho detekčného systému zo všetkých hodnôt v období 12.08. – 07.10.2019.

Stredná denná radónová vlna dosahuje maximum o 07:00 a minimum o 17:00, rovnako ako je to pri strednej dennej vlne ekvivalentnej objemovej aktivity nameranej na našom detekčnom systéme. Konštatujeme teda rýchlejšiu odozvu nášho detekčného systému oproti AlphaPM. Tento posun môže byť spôsobený nižším prietokom ( $f=2 \ell \text{ min}^{-1}$ ) oproti  $f=49,5 \ell \text{ min}^{-1}$ . Spôsob vyhodnocovania jednotky AlphaPM je nastavený na meranie v 10 min intervaloch, ktoré následne priemeruje do jednej hodnoty prislúchajúcej danej hodine. Náš systém pracuje v 2-h intervaloch. Počas prvých 20 minút odoberá vzorku a meria, zvyšok 2-h intervalu prebieha iba meranie filtra pre lepšiu štatistiku merania torónu. Výsledná hodnota potom prislúcha reálnej aktivite v konkrétnej hodine. Stredné denné priebehy rovnovážneho faktora  $F$  zobrazené na obrázku 17 nie sú v dobrej zhode, korelačný koeficient  $R^2 = 0,12$ . Toto môžeme vysvetliť tým, že rovnovážny faktor  $F$  počítame z reálnych dát. Oproti tomu AlphaPM dopočítava rovnovážny faktor  $F$  matematickou metódou.

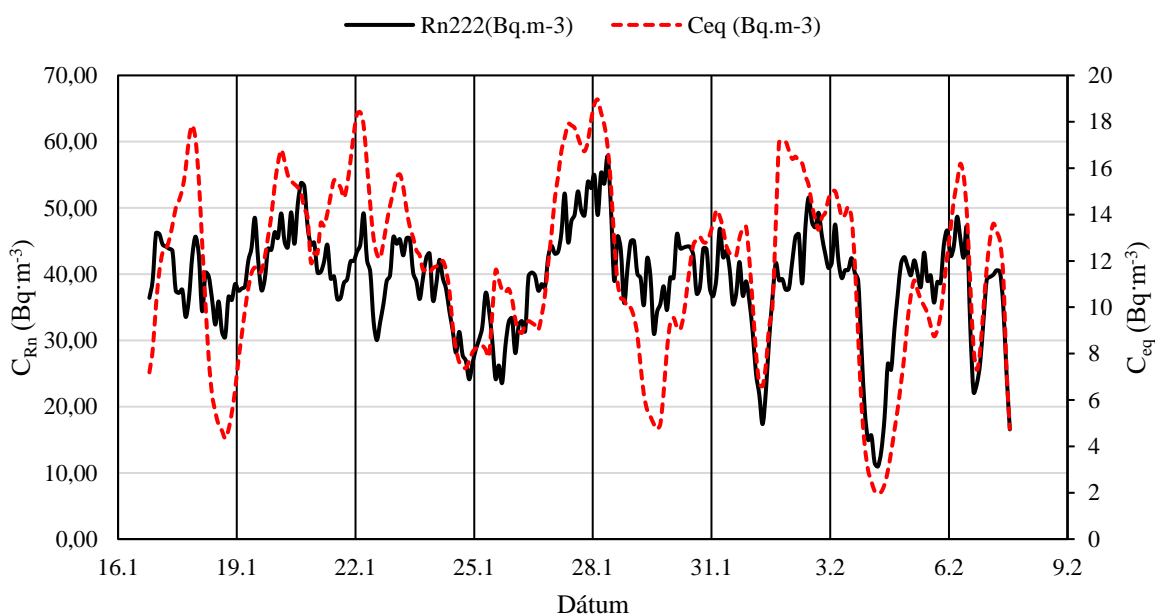


Obrázok 17 Priemerný denný priebeh rovnovážneho faktora  $F$  z AlphaPM a nášho detekčného systému zo všetkých hodnôt v období 12.08. – 07.10.2019

### 5.1.1. Testovanie efektu hadice pri odbere vzoriek

Testovanie detekčného systému pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu vo vnútornej atmosfére bolo dôležité pre oboznámenie sa s jeho činnosťou pred jeho trvalým umiestnením do vysunutého laboratória v areáli meteorologických meraní na FMFI UK. Princíp detekcie je bližšie opísaný v kapitole 4. Meranie je rozdelené do troch meracích intervalov. Spektrometrické meranie prebieha počas všetkých troch intervalov, no iba počas prvého meracieho intervalu ktorý trvá 20 minút je vzduch presávaný cez filter.

Po umiestnení detekčného systému v areáli meteorologických meraní bude vzorka vzduchu prechádzať na filter cez hadicu vyvedenú z vysunutého laboratória von. Aby sme overili efekt záchytu častíc na stene hadice a tiež ako bude na zapojenie reagovať detekčný systém, pripojili sme k detektoru 1,5 m dlhú hadicu. Meranie prebiehalo v laboratóriu F1 256 v období od 16.1.2019 do 7.2.2019. Pri spustení merania bola hadica pripojená k detekčnému systému. 25.1. 2019 bola hadica odpojená a meranie pokračovalo ďalej. Ako referenčný monitor pri tomto testovaní slúžil AlphaGUARD, ktorým bola meraná objemová aktivita radónu v laboratóriu.



**Obrázok 18** Priebeh objemovej aktivity radónu a ekvivalentnej objemovej aktivity v laboratóriu F1 256 v období 16.1.2019 do 7.2.2019.

Na Obrázku 18 je zobrazený priebeh objemovej aktivity radónu v laboratóriu porovnaný s priebehom ekvivalentnej objemovej aktivity. Ako bolo napísané vyššie, táto séria meraní začínala s hadicou ( $d=1,5m$ ) pripojenou na monitor produktov premeny. Hadica bola odpojená simultánne s výmenou filtra dňa 25.1. o 10:50 ZČ. Teplota v laboratóriu počas merania bola konštantná, okolo 25 °C.

**Tabuľka 7 Hodnoty  $R^2$  objemovej aktivity radónu a ekvivalentnej objemovej aktivity, objemovej aktivity produktov premeny a rovnovážneho faktora  $F$ .**

$R^2$	$C_{Rn} [Bq \cdot m^{-3}]$		
	s hadicou	bez hadice	celé obdobie
$C_{eq} [Bq \cdot m^{-3}]$	0,37	0,58	0,51
$C_{218Po} [Bq \cdot m^{-3}]$	0,28	0,66	0,48
$C_{214Pb} [Bq \cdot m^{-3}]$	0,33	0,58	0,50
$C_{214Bi} [Bq \cdot m^{-3}]$	0,45	0,50	0,47
$F$	0,02	0,04	0,03

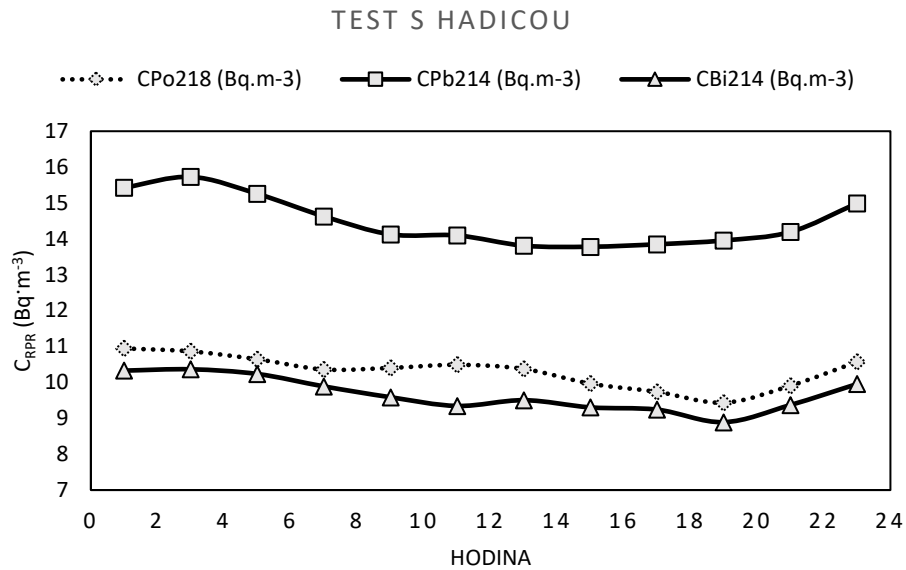
Aj keď sú priebehy objemových aktivít na Obrázku 18 v dobrej zhode, je vidieť, že priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity je v lepšej zhode s priebehom OAR po odpojení hadice. Z hodnôt korelačných koeficientov v Tabuľke 7 je vidieť dobrú koreláciu medzi objemovou aktivitou radónu a ekvivalentnou objemovou aktivitou ( $R^2 = 0,58$ ) pri meraní bez hadice, oproti  $R^2 = 0,37$  pri meraní so zapojenou hadicou. Najvýznamnejšie oslabenie korelačného faktora z  $R^2 = 0,66$  na  $R^2 = 0,28$  je vidieť pri korelácii medzi objemovou aktivitou radónu a objemovou aktivitou  $^{218}Po$ .

**Tabuľka 8 Stredné hodnoty sledovaných parametrov z celkového priebehu všetkých parametrov.**

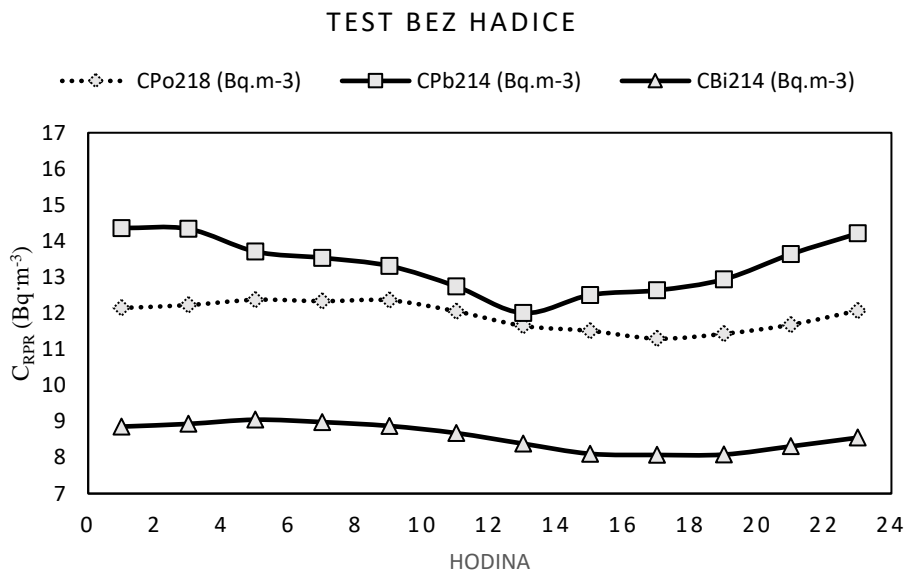
Priemer	$C_{Rn222} [Bq \cdot m^{-3}]$	$C_{218Po} [Bq \cdot m^{-3}]$	$C_{214Pb} [Bq \cdot m^{-3}]$	$C_{214Bi} [Bq \cdot m^{-3}]$
S hadicou	39,7	10,3	14,5	9,7
Bez hadice	38,6	11,9	13,3	8,6

Priemer	$C_{eq} [Bq \cdot m^{-3}]$	$F$
S hadicou	12,3	0,3
Bez hadice	11,4	0,3

Môžeme konštatovať, že tento rozdiel hodnôt je spôsobený záchytom voľnej frakcie  $^{218}Po$  na stenách hadice. Voľnú frakciu  $^{218}Po$  tvorí 1-10% z celkovej objemovej aktivity, toto percento sa mení z vlastnosťami prostredia. Vo vnútornej atmosfére, kde sú hodnoty objemovej aktivity vyššie je táto frakcia nižšia, pretože sa zvyšuje pravdepodobnosť záchytu atómov neviazaných jadier  $^{218}Po$  na prachové častičky.



**Obrázok 19** Priemerný denné priebeh objemovej aktivity produktov premeny počas merania s pripojenou hadicou.



**Obrázok 20** Priemerný denné priebeh objemovej aktivity produktov premeny počas merania bez hadice.

Efekt zachytávania  $^{218}\text{Po}$  je viditeľný aj na Obrázkoch 19 a 20, kde je zobrazený priemerný denný priebeh objemovej aktivity produktov premeny pri teste s hadicou a bez hadice. Opäť sú viditeľné o niečo nižšie objemové aktivity  $^{218}\text{Po}$ . Pomer  $^{218}\text{Po}/^{222}\text{Rn} = 0,31$  pri teste bez hadice a  $^{218}\text{Po}/^{222}\text{Rn} = 0,26$  pri teste s hadicou. Keď však tieto výsledky premietneme do ekvivalentnej objemovej aktivity, ktorá vyjadruje lineárnu kombináciu produktov premeny,  $^{218}\text{Po}$  prispieva len malou váhou (0,105).



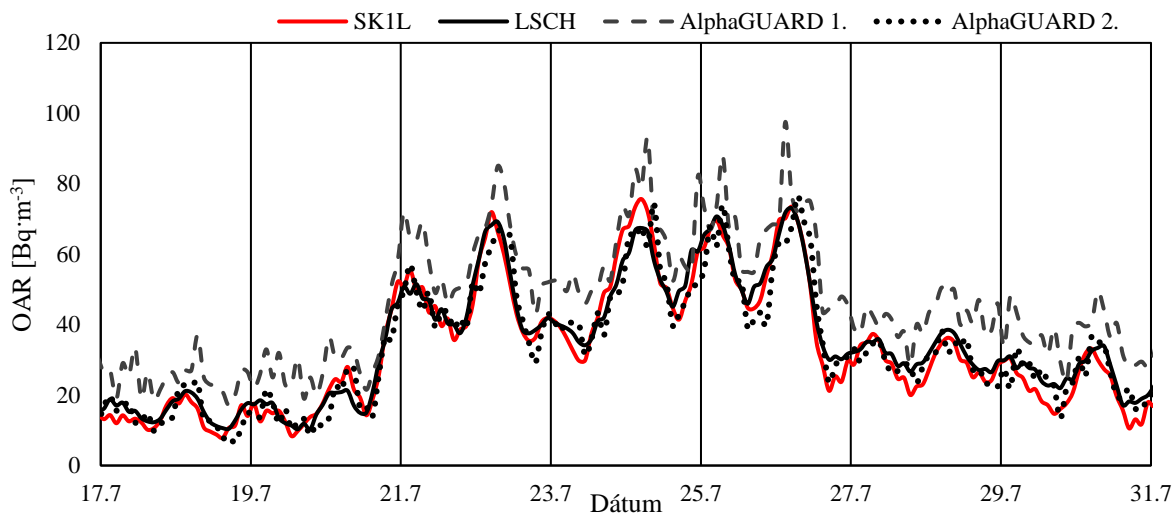
**Tabuľka 9 Rovnovážny faktor  $F$ ,  $F_1$ ,  $F_2$  a  $F_3$ .**

Meranie	$F$	$F_1$	$F_2$	$F_3$
s hadicou	0,31	0,26	0,37	0,24
bez hadice	0,29	0,31	0,35	0,22

Keď sa pozrieme na rovnovážny faktor, ktorý vyjadruje pomer medzi ekvivalentnou objemovou aktivitou a jeho objemovou aktivitou, je vidieť len malý rozdiel. Rovnovážny faktor  $F$  pri meraní s hadicou je rovný 0,31 a pri meraní bez hadice je rovný 0,29. Môžeme teda konštatovať že efekt zapojenia hadice nie je významný a neznižuje dôveryhodnosť merania.

### **5.1.2. Porovnanie detekčných systémov pre meranie radónu vo vnútornej atmosfére**

Testovaniu vo vnútornej atmosfére boli podrobené aj systémy pre meranie radónu. Dva zo 4 detekčných systémov boli skonštruované na FMFI UK. Jedná sa o veľkoobjemovú scintilačnú komoru (LSCH) a objemová komoru s objemom 1 l (SK1L). Ďalej boli použité dva komerčne dostupné detektory AlphaGUARD s ionizačnou komorou. Menšia scintilačná komora SK1L bola uvedená do prevádzky najprv v laboratóriu F1 256 na FMFI UK. Cieľom tohto experimentu bolo otestovať, ako funguje SK1L v porovnaní s inými detektormi pred tým, ako bude umiestnená do laboratória v areáli meteorologických pozorovaní. Počas experimentu bola meraná OAR v laboratóriu F1 255, v ktorej je umiestnená LSCH. Okná boli počas experimentu zatvorené a do laboratória sa vstupovalo v obmedzenom režime, tak aby nedochádzalo k úniku vzduchu nasýteného radónom. Výsledný priebeh merania OAR pomocou SK1L, LSCH, AlphaGUARDu 1 a AlphaGUARDu 2 je zobrazený na obrázku 21.



Obrázok 21 Priebehy objemovej aktivity radónu namerané pomocou SK1L, LSCH a dvoch jednotiek AlphaGUARD v laboratóriu F1 256 v období 17.07.2018 do 31.07.2018.

Z dosiahnutých výsledkov možno konštatovať, že všetky detektory merali OAR v dobrej zhode. Pozorujeme silnú koreláciu medzi SK1L a LSCH ( $R^2 = 0,96$ ), ale aj s AlphaGUARDom č. 1 ( $R^2 = 0,91$ ) a AlphaGUARDom č. 2 ( $R^2 = 0,89$ ). Výsledkom tohto testovania bolo záver, že scintilačná komora SK1L poskytuje dôveryhodné údaje o OAR, ktoré sú v dobrej zhode s nezávislým meraním OAR pomocou iných detekčných systémov a môže byť trvalo umiestnená v laboratóriu meteorologických pozorovaní.

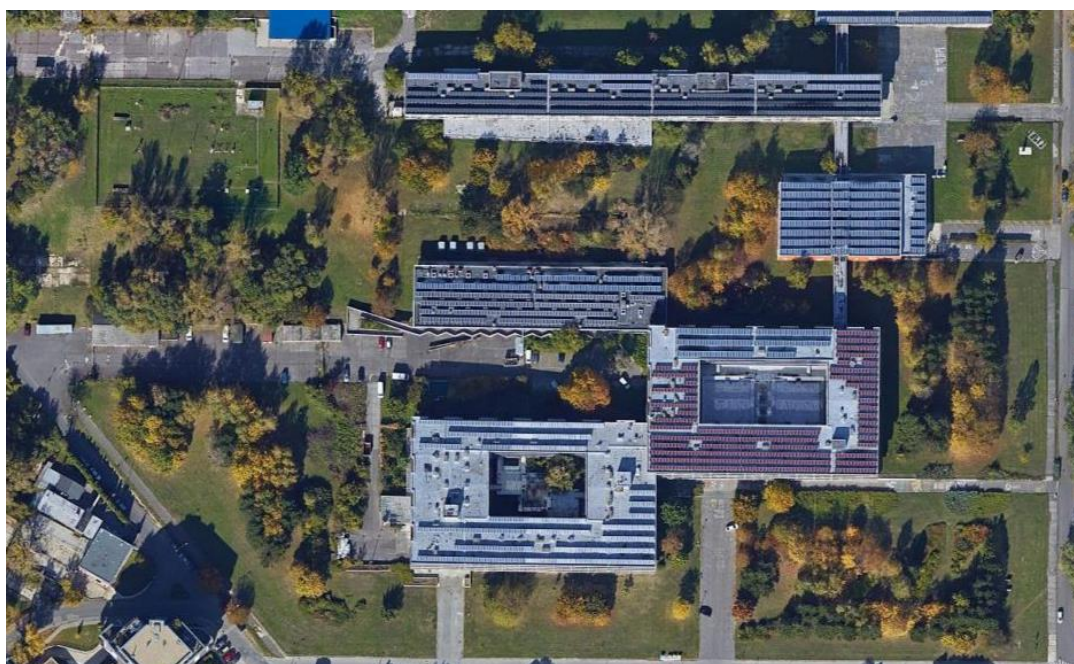
## 5.2. Merania vo vonkajšej atmosfére

### 5.2.1. Porovnanie kontinuálnych detektorov radónu na báze scintilačných komôr

Kontinuálne meranie objemovej aktivity radónu (OAR) bolo realizované počas celého obdobia sledovaného v tejto práci, pomocou dvoch nezávisle kalibrovaných scintilačných detektorov v areáli fakulty Matematiky, Fyziky a Informatiky Univerzity Komenského v Bratislave a prebiehalo súčasne s meraním EOAR. Detektory boli umiestnené vo vzdialenosti približne 220 m od seba (Obrázok 22, zemepisné súradnice:  $48^{\circ} 9'4''$  s.z.š.,  $17^{\circ} 4'14''$  v.z.d.). Veľkoobjemová scintilačná komora (LSCH) je trvalo umiestnená v laboratóriu F1 256 na FMFI UK a slúži ako referenčný monitor OAR [POVINEC a kol., 1992]. Vzduch je do komory privádzaný z odberového miesta medzi stromami v závetří budovy. Scintilačná komora s objemom 1 l (SK1L) bola po testovaní vo vnútornej atmosfére umiestnená v areáli

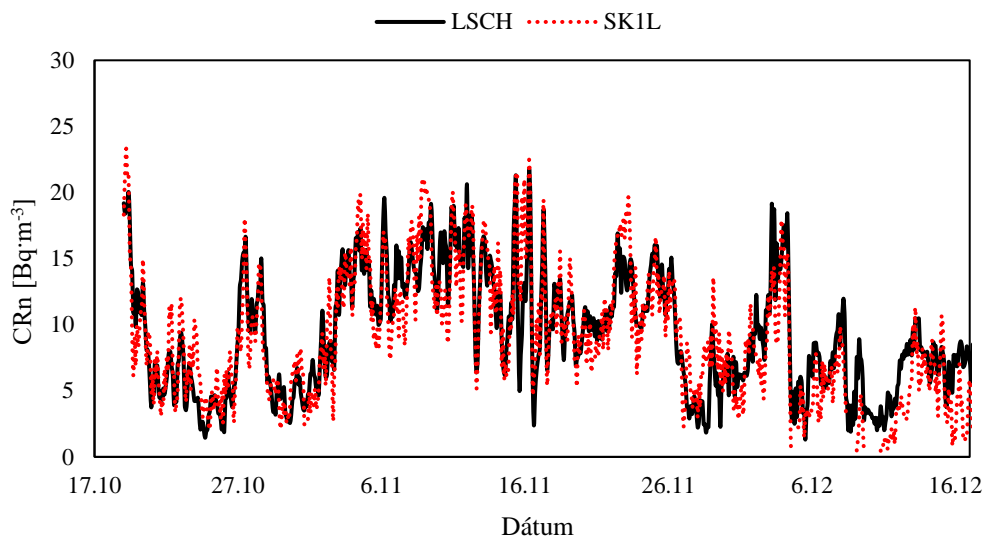
meteorologických pozorovaní a v októbri v roku 2018 bola uvedená do prevádzky. Terén na odberovej lokalite je trávnatý a rovinný. Aktívne objemy scintilačných komôr sú 2,25 ℓ (LSCH) a 1,0 ℓ (SK1L). Vzduch sa odoberá z výšky 1,5 m cez plastovú hadicu a čerpanie prebieha pri prietoku  $\sim 0,5 \text{ ℓ min}^{-1}$ .

Tesne pred vstupom do aktívneho objemu komory vzduch prechádza cez filter. V tomto procese sa aerosóly a produkty premeny radónu odstránia, teda do komory vstupuje vzduch obsahujúci len čistý radón. Namerané početnosti impulzov sú automaticky zaznamenané a uložené v pamäti počítača. Pomocou Wardovej kalibračnej metódy [WARD a BORAK, 1999] sú následne tieto početnosti prepočítané na údaje o objemovej aktivite radónu patriace do 2-hodinových intervalov.



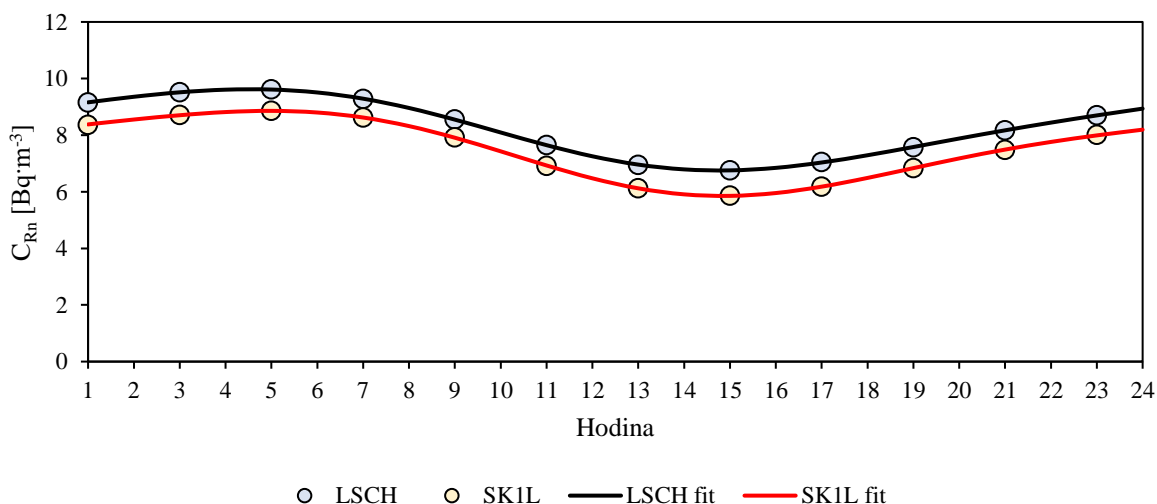
Obrázok 22 Snímok areálu FMFI UK [Zdroj: <https://www.google.com/maps>].

Porovnanie nameraných priebehov OAR v areáli FMFI UK pomocou oboch detektorov po uvedení do prevádzky je znázornené na obrázku 23.



Obrázok 23 Priebek objemovej aktivity radónu LSCH a SKIL v roku 2018.

Priebehy OAR z LSCH sú v dobrej zhode s priebehom SKIL ( $R^2 = 0,68$ ). Oba detektory pružne reagujú na zmeny koncentrácie OAR vo vonkajšej atmosfére. Korelácia priebehov OAR počas celého sledovaného obdobia bola  $R^2 = 0,56$ . V tejto práci sú namerané údaje o OAR porovnávané s priebehom EOAR. Analyzované preto boli údaje za časové obdobie, počas ktorého dochádzalo k prieniku 3 detektorov (keď všetky 3 detektory merali súčasne).



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

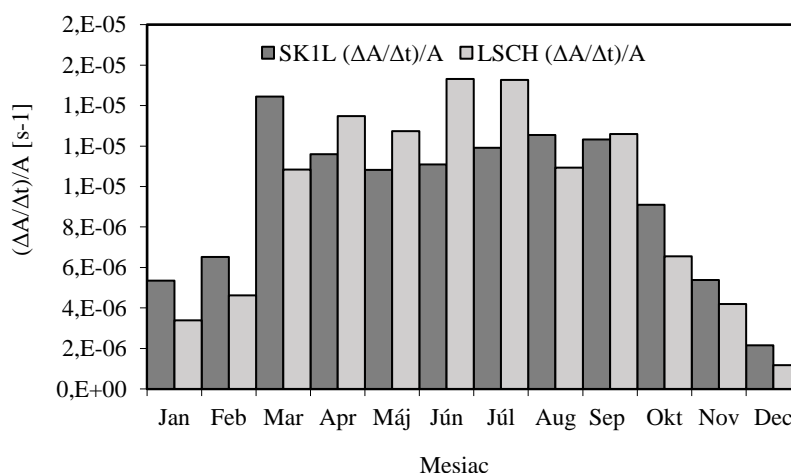
Z vypočítaných denných priebehov pozorujeme štandardnú dennú variáciu OAR s minimálnymi hodnotami o 15. hodine popoludní a maximom o 5. hodine ráno

a vysoký korelačný koeficient  $R^2 = 0,99$ . Dobrá korelácia  $R^2 > 0,9$  medzi 2-h údajmi bola pozorovaná hlavne v teplých mesiacoch, najmenšia v januári ( $R^2 = 0,86$ ) a decembri ( $R^2 = 0,79$ ). Konštatujeme tak dobrú zhodu aj pri zmene ročného obdobia, ktorá zo sebou prináša zmeny vertikálneho premiešavania a posilňuje výmenu vzduchu v spodnej časti atmosféry. Najnižšej stredné mesačné hodnoty OAR boli zistené vo februári ( $5,3 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  pre SK1L) a v apríli ( $6,1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  pre LSCH), najvyššie v novembri ( $9,6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ;  $11,5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ) pre SK1L aj LSCH.

Pre bližšie porovnanie dát z dvoch detektorov bol analyzovaný parameter  $\lambda_R$  definovaný ako:

$$\lambda_R = (\Delta A / \Delta t) / A \quad (39)$$

kde  $\Delta A$  je rozdiel medzi maximálnou a minimálnou hodnotou OAR v strednej dennej vlne a radónu,  $\Delta t$  je trvanie nárastu OAR z minima do maxima a  $A$  je stredná denná hodnota OAR.  $\lambda_R$  predstavuje takzvanú odstraňovaciu konštantu, čo je miera odstraňovania radónu z prízemnej vrstvy atmosféry v dôsledku rádioaktívneho rozpadu a premenlivej rýchlosti vetra [MINATO, 1984]. Priebeh  $\lambda_R$  pre LSCH a SK1L je veľmi podobný, s maximom počas leta a minimom počas zimných mesiacov (Obrázok 25). Korelačný koeficient medzi priebehmi je na úrovni  $R^2 = 0,77$ .



Obrázok 25 Sezónne variácie na dvoch meracích miestach na FMFI UK

Priemerná hodnota pomeru  $\lambda_R$  (LSCH) /  $\lambda_R$  (SK1L) počas letných mesiacov je 1,18, zatiaľ čo v chladných zimných mesiacoch je 0,65, čo naznačuje stabilnejšie

podmienky v atmosfére na lokalite v areáli meteorologických pozorovaní počas zimného obdobia. Za predpokladu, že radón je rovnomerne distribuovaný do výšky  $h$  [m] počas stabilných podmienok v nočnej atmosfére, pomer  $\Delta A/\Delta t$  môžeme vyjadriť ako [FONTAN, 1976]:

$$\frac{\Delta A}{\Delta t} = \frac{E_s}{h_e} \quad (40)$$

Kde:  $E_s$  je exhalačná rýchlosť a  $h_e$  je ekvivalentná zmiešavacia výška. Podobne ako  $\lambda_R$ , aj  $\Delta A/\Delta t$  dosahuje maximum počas letných mesiacov (1,08) a minimum v zimných mesiacoch (0,82). Korelačný koeficient medzi priebehmi je na úrovni  $R = 0,93$ . Vo výpočtoch sme vychádzali z toho, že na oboch lokalitách budeme uvažovať jednotnú exhalačnú rýchlosť radónu ( $E_{s,Rn} = 0,0138 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ), a z doby nárastu OAR a veľkosti tohto nárastu z denného minima do nočného maxima bola dopočítaná ekvivalentná zmiešavacia výška. Výsledky pre jednotlivé mesiace sú uvedené v Tabuľke 10. Z výsledkov v tabuľke konštatujeme v priemere o 18 % nižšie hodnoty zmiešavacej výšky pred FMFI UK v porovnaní s areálom meteorologických pozorovaní. Rozdiely v ekvivalentnej zmiešavacej výške medzi týmito blízkymi lokalitami sú zrejme spôsobené tým, že odberové miesto pred FMFI UK je čiastočne tienené blízkymi stromami, čo má za následok nižšiu intenzitu vertikálneho premiešavania vzduchu. Najväčší rozdiel bol pozorovaný v marci a októbri, najmenší zase v januári a máji.

**Tabuľka 10 Porovnanie vybraných sledovaných parametrov analyzovaných pre OAR z LSCH a SK1L nameraných v areáli FMFI UK.**

Mesiac	Detektor	$\Delta A'$	$(\Delta A/\Delta t)/A$	$\Delta A/\Delta t$	$h(\Delta A, \Delta)$	(SK1L) [m] /h (LSCH) [m]
Jan	LSCH	1,02	3,40E-06	2,80E-05	487	0,96
	SK1L	1,63	4,40E-06	3,20E-05	467	
Feb	LSCH	1,39	4,60E-06	3,20E-05	428	1,07
	SK1L	1,7	5,00E-06	3,40E-05	458	
Mar	LSCH	3,43	1,10E-05	7,90E-05	174	1,69
	SK1L	2,73	8,20E-06	5,10E-05	294	
Apr	LSCH	3,56	1,30E-05	8,20E-05	167	1,27
	SK1L	3,75	1,40E-05	6,50E-05	212	
Máj	LSCH	3,4	1,30E-05	7,90E-05	175	1,05
	SK1L	3,61	1,20E-05	7,50E-05	184	
Jún	LSCH	3,47	1,50E-05	9,60E-05	143	1,3
	SK1L	3,64	1,10E-05	7,10E-05	186	
Júl	LSCH	4,23	1,50E-05	1,20E-04	117	1,42
	SK1L	3,93	1,00E-05	7,90E-05	167	
Aug	LSCH	4,14	1,10E-05	9,60E-05	144	1,13
	SK1L	4,4	8,80E-06	8,10E-05	163	
Sep	LSCH	4,42	1,30E-05	1,00E-04	135	1,21
	SK1L	4,54	9,00E-06	8,00E-05	163	
Okt	LSCH	2,88	6,50E-06	6,70E-05	207	1,45
	SK1L	2,71	5,60E-06	5,30E-05	300	
Nov	LSCH	2,08	4,20E-06	4,80E-05	287	1,23
	SK1L	2,33	3,60E-06	4,00E-05	352	
Dec	LSCH	0,58	1,20E-06	1,30E-05	1023	1,34
	SK1L	1,19	2,20E-06	2,10E-05	761	
Celkovo	LSCH	2,88	9,24E-06	7,00E-05	291	1,26
	SK1L	3,01	7,82E-06	5,68E-05	309	

### 5.2.2. Meranie produktov premeny vo vonkajšej atmosfére

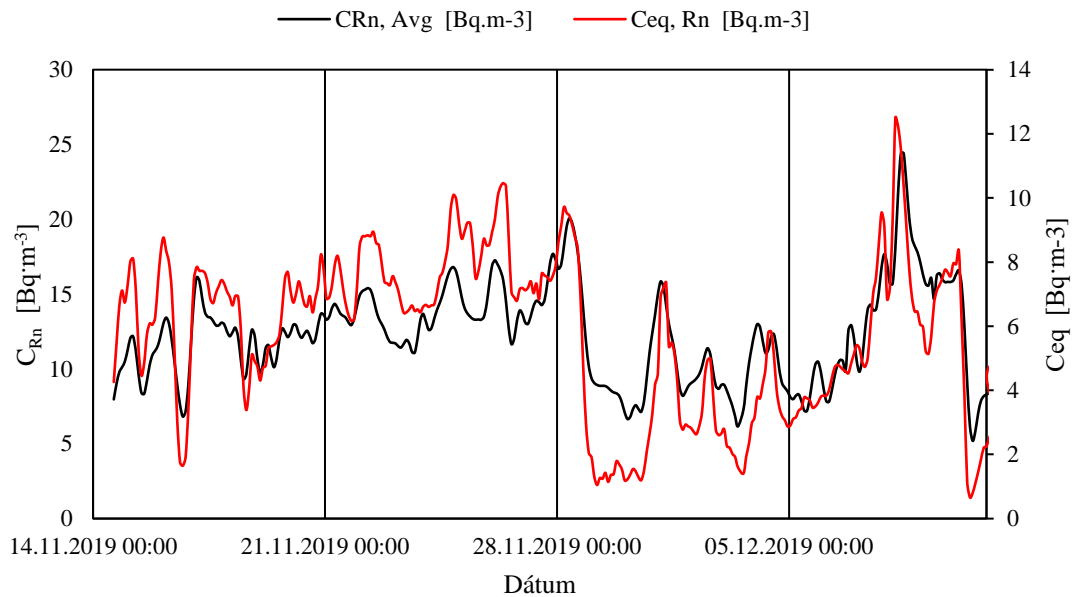
Detekčný systém pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu (ďalej len Monitor RPR ), ktorý bol po otestovaní vo vnútornej atmosfére bol trvalo umiestnený do vysunutého laboratória v areáli meteorologických pozorovaní na FMFI UK. Konštatovali sme, že v podmienkach vnútornej atmosféry pracuje v dobrej zhode s detekčným systémom AlphaGUARD a jeho prídavným systémom pre meranie ekvivalentnej objemovej aktivity a rovnovážneho faktora  $F$ . Po testovaní vo vnútornej atmosfére nasledovalo meranie objemovej aktivity produktov premeny radónu vo vonkajšej atmosfére. Vďaka tomu boli v prevádzke až 3 detektory, ktoré v kontinuálnom režime zbierali údaje o rádioaktivite atmosféry.

Na FMFI UK prebiehalo meranie objemovej aktivity radónu vo vonkajšej atmosfére pomocou dvoch nezávisle kalibrovaných detekčných zariadení, ktoré merali súbežne. Pre tento účel bola využitá veľkoobjemová scintilačná komora umiestnená v laboratóriu F1 256 na FMFI UK a litrová scintilačná komora SK1L umiestnená vo vysunutom laboratóriu v areáli meteorologických pozorovaní na FMFI UK. Jednotlivé detekčné systémy sú bližšie predstavené v kapitole 4. Dolné hranice detekcie na úrovni spoľahlivosti 95 % [CURRIE, 1968; ZAHOROWSKI, 2004] sú  $2,8 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  pre LSCH (početnosť pozadia je  $0,0166 \text{ s}^{-1}$  a citlivosť detektora je  $0,0026 \text{ s}^{-1}/1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ) a  $3,5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  pre SK1L (početnosť impulzov na pozadí je  $0,008 \text{ s}^{-1}$  a citlivosť detektora je  $0,0015 \text{ s}^{-1}/1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ). Tieto detekčné systémy umožňujú získať takmer 80 % vonkajšej objemovej aktivity radónu s chybou menšou ako 30 % [PUTMAN, 1962]. Na minimalizáciu neistoty súvisiacej s meraniami objemovej aktivity radónu boli údaje z dvoch scintilačných detektorov spriemerované. Keďže oba detektory merajú objemovú aktivitu radónu s približne rovnakými neistotami, konečná neistota sa pri použití priemernej hodnoty z oboch detektorov zníži o faktor  $1/\sqrt{2}$ .

Kontinuálne meranie detekčného systému pre meranie krátkožijúcich produktov premeny radónu prebiehalo od novembra 2019 do októbra 2022. Bolo analyzovaných 36 po sebe idúcich mesiacov a celkovo viac ako 10 000 dvojhodinových údajov o objemovej aktivite krátkožijúcich produktov premeny radónu. Meralo sa v rovnakom počte zimných, letných, jesenných aj jarných mesiacov a do výpočtov boli uvažované dáta iba v takých dňoch, kedy súčasne merali všetky tri detekčné systémy (veľkoobjemová scintilačná komora umiestnená v laboratóriu F1 256 na FMFI UK, litrová scintilačná komora SK1L umiestnená vo vysunutom



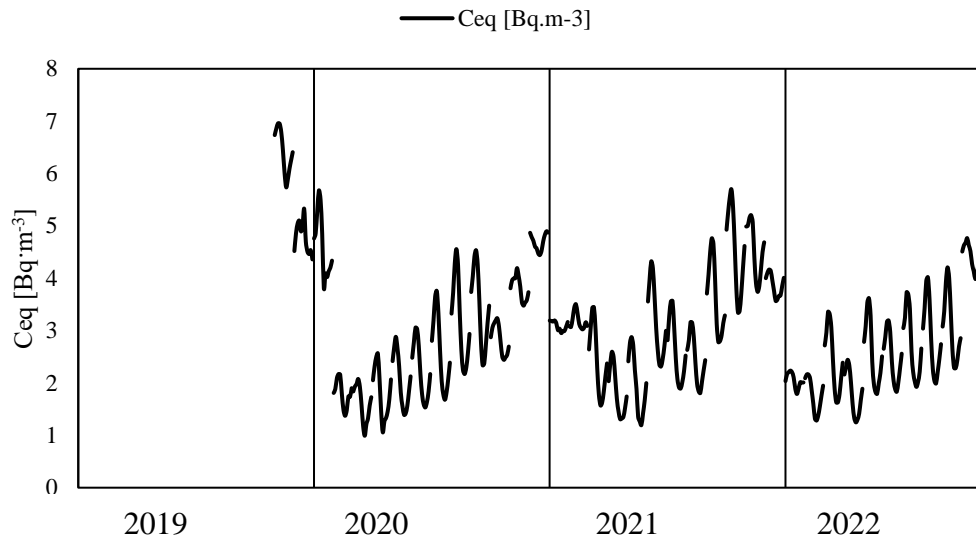
laboratóriu v areáli meteorologických pozorovaní na FMFI UK a detekčný systém pre meranie krátko žijúcich produktov premeny radónu). Okrem prieniku 3 detektorov ďalšou podmienkou bolo, že do úvahy boli brané iba dáta, ktoré počas 24 h obsahovali aspoň 6 hodnôt o objemovej aktivite produktov premeny (meraných v 2-h intervaloch od 01:00 do 23:00). Zapojenie detekčného systému bolo rovnaké ako na Obrázku 10 (kapitola 4.).



**Obrázok 26** Priebek strednej objemovej aktivity radónu z dát z dvoch scintilačných komôr (čierna) a ekvivalentnej objemovej aktivity radónu (červená) po uvedení do prevádzky v roku 2019.

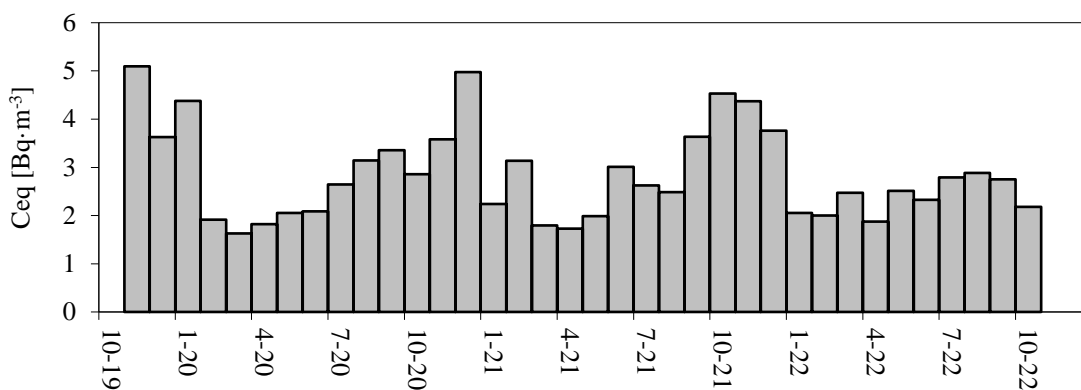
Detekčný systém bol uvedený do prevádzky 14.11.2019 a prvé meranie prebiehalo do 11.12.2019. Priebek ekvivalentnej objemovej aktivity radónu, zobrazený na Obrázku 26, bol vypočítaný podľa vzťahu (16) a reprezentuje objemové aktivity troch produktov premeny. Nazbierané výsledky o objemovej aktivite produktov premeny, respektíve ekvivalentnej objemovej aktivite radónu boli už krátko po spustení, po prvých dvoch mesiacoch merania, v prekvapivo dobrej zhode s priebehom objemovej aktivity radónu ( $R^2 = 0,78$ ). Detekčný systém bol opätovne spustený 15.1.2020 a od tej doby meranie prebiehalo kontinuálne. Výmena filtra bola vykonávaná raz týždenne. Počas takejto odstávky, kedy boli z výpočtovej jednotky stiahnuté namerané spektrá, dochádzalo k strate jedného 2h intervalu. Hodnota korelačného koeficienta všetkých spracovaných dát zo sledovaného obdobia je  $R^2 = 0,64$  pre OAR,  $R^2 = 0,60$  pre  $^{218}\text{Po}$ ,  $R^2 = 0,59$  pre  $^{214}\text{Pb}$  a  $R^2 = 0,58$  pre  $^{214}\text{Bi}$ .

Konštatujeme, že priebehy EOAR a jednotlivých krátkožijúcich produktov premeny sú v dobrej zhode. Aby bolo možné lepšie porovnávať denné a sezónne variácie, boli urobené stredné denné priebehy pre jednotlivé mesiace, ročné obdobia a jednotlivé roky. Pri stredných denných priebehoch sú z kontinuálnych dát odstránené náhodné fluktuácie, ktoré sa odvíjajú od aktuálneho stavu atmosféry v dobe odberu vzorky.



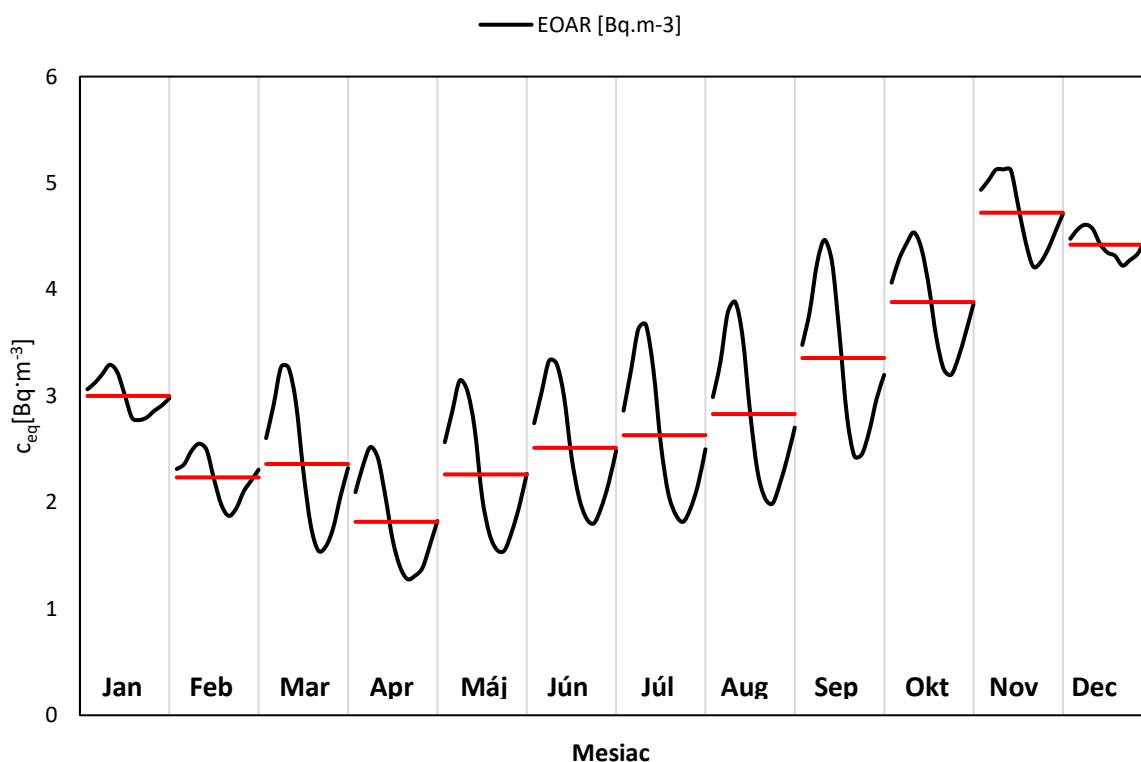
**Obrázok 27** Stredné denné priebehy ekvivalentnej objemovej aktivity radónu pre jednotlivé mesiace rokov 2019 – 2022.

Zo stredných denných priebehov je vidieť, že priemerná hodnota EOAR vykazuje rovnaké sezónne variácie počas celého obdobia merania, aké je možné pozorovať pri objemovej aktivite radónu. Najvyššie priemerné mesačné hodnoty dosahuje v jesenných a zimných mesiacoch, s najvyššími hodnotami v novembri 2019 ( $A = 6,42 \text{ [Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$ ). V upršaných jarných mesiacoch, kedy sa začína priemerná teplota zvyšovať, pozorujeme najnižšie priemerné mesačné hodnoty. Najnižšia stredná mesačná hodnota bola nameraná v marci 2020 ( $A = 1,60 \text{ [Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$ ). Priemerná hodnota EOAR počas merania z celého obdobia bola na úrovni  $2,98 \pm 0,76 \text{ [Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$ .



Obrázok 28 Stredné mesačné hodnoty ekvivalentnej objemovej aktivity za obdobie rokov 2019-2022.

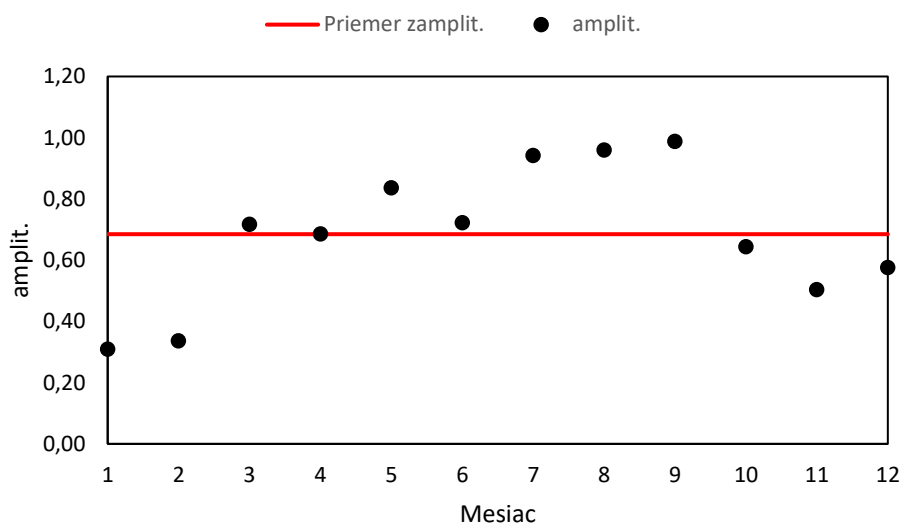
Z priebehu stredných mesačných hodnôt ekvivalentnej objemovej aktivity zobrazenej na Obrázku 28 je vidieť, že stredná mesačná hodnota od jarných mesiacov smerom k zimným narastá. Ešte lepšie je tento trend viditeľný na obrázku 29, na ktorom sú zobrazené stredné denné vlny pre jednotlivé mesiace.



Obrázok 29 Priemerné denné priebehy ekvivalentnej objemovej aktivity pre jednotlivé mesiace za obdobie rokov 2019-2022.

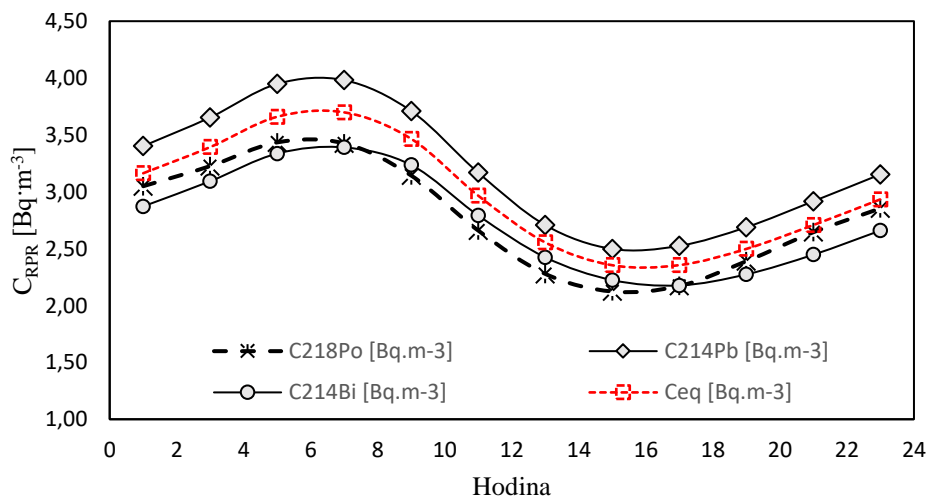
Hodnoty EOAR dosahujú maximá v jesenných a zimných mesiacoch. Najvyššie amplitúdy strednej mesačnej radónovej vlny, vypočítané ako polovica rozdielu maximálnej a minimálnej hodnoty, boli namerané v mesiacoch júl, august a september (0,94; 0,96; 0,99 Bq·m<sup>-3</sup>), najnižšie v zimných mesiacoch január a február (0,34; 0,36

Bq·m<sup>-3</sup>). Priemerné amplitúdy stredných denných vln pre jednotlivé mesiace sú zobrazené na Obrázku 30.



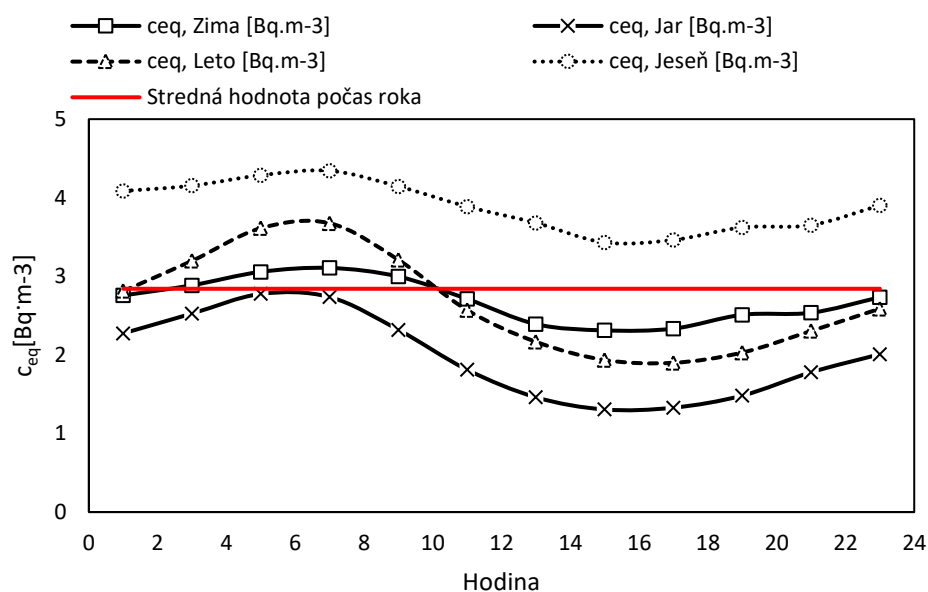
Obrázok 30 Ročný priebeh amplitúd ekvivalentnej objemovej aktivity.

Amplitúda stredných denných vln je najmenšia v studených mesiacoch vyznačujúcich sa slabou teplotnou inverziou. Najvyššie hodnoty naopak pozorujeme v mesiacoch s vyššou priemernou dennou teplotou.



Obrázok 31 Denný priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity radónu (označený červenou prerušovanou čiarou a štvorcem), objemovej aktivity <sup>218</sup>Po (označený prerušovanou čiernou čiarou a hviezdíčkom), objemovej aktivity <sup>214</sup>Pb (označený plnou čiernou čiarou a kosoštvorcom) a <sup>214</sup>Bi (označený plnou čiarou a krúžkom) počas rokov 2019-2022.

Priemerná denná variácia je zobrazená na obrázku 31. Stredná denná vlna EOAR nameraná pre celé obdobie merania dosahuje minimum okolo 15:00 a maximum o 7:00 hodine. Keď sa však pozrieme na obrázok 32, vidíme odlišné stredné denné vlny pre jednotlivé ročné obdobia. Z obrázka tiež vidíme, že stredná denná vlna, ktorá vznikla spriemerovaním stredných denných vln pre jednotlivé mesiace, dosahuje v zimnom a jesennom období maximá o 9:00 a minimálne hodnoty o 15:00. V oblasti minima vzniká plató, teda interval počas ktorého EOAR narastá veľmi pomaly oproti jarnému a letnému obdobiu, kedy EOAR narastá o niečo intenzívnejšie.



Obrázok 32 Priemerný denný priebeh ekvivalentnej objemovej aktivity počas zimy, jari, leta a jesene za obdobie rokov 2019-2022.

Aby sme mohli bližšie preskúmať, ako sa v priebehu roka mení maximum EOAR, na tento účel bola skonštruovaná priemerná ročná radónová vlna získaná spriemerovaním stredných mesačných vln v danom roku získaných pomocou Garzonovho prístupu. Počas roka dosahuje EOAR maximum približne o 7. hodine. Jesenné mesiace majú maximum posunuté až k 8:30. V zime dosahuje EOAR maximum približne o 7:30, ostatné mesiace dosahujú maximum medzi 6. – 7. hodinou. Stredná denná vlna počas roka dosahuje minimum o 17. hodine. Počas roka sa poloha minima tiež mení, ale je možné pozorovať menší posun ako pri hodnotách v oblasti maxima. Hodnoty minima sú s meniacim sa ročným obdobím pozorované medzi 16:30

až 17:30, v zimných mesiacoch môžu nastať až medzi 19. – 20. hodinou. Stredné denné hodnoty sledovaných izotopov sú pre jednotlivé mesiace uvedené v Tabuľke 11.

**Tabuľka 11 Stredné denné hodnoty objemových aktivít radónu, jeho produktov premeny a ekvivalentnej objemovej aktivity za obdobie 2019-2022.**

Priemer	$C_{Rn}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]	$C_{eq}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]	$C_{Po218}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]	$C_{Pb214}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]	$C_{Bi214}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]
Január	7,15	3,00	2,83	3,60	2,88
Február	6,57	2,23	2,07	2,42	2,07
Marec	5,40	2,36	1,95	2,29	2,04
Apríl	5,47	1,82	1,58	1,89	1,72
Máj	6,80	2,26	2,48	2,25	2,11
Jún	8,00	2,51	2,38	2,77	2,51
Júl	8,78	2,63	2,61	2,75	2,52
August	9,58	2,83	2,74	2,99	2,66
Sept.	9,19	3,36	3,38	3,53	3,19
Október	8,97	3,88	3,71	4,31	3,47
Nov.	10,57	4,72	4,36	5,45	4,38
December	9,16	4,42	3,70	5,07	3,81
<b>Celé obdobie</b>	<b>7,97</b>	<b>3,00</b>	<b>2,82</b>	<b>3,28</b>	<b>2,78</b>
Zima	7,63	2,14	2,87	3,70	2,92
Jar	5,89	2,66	2,01	2,14	1,96
Leto	8,79	3,99	2,58	2,84	2,56
Jeseň	9,58	3,22	3,81	4,43	3,68

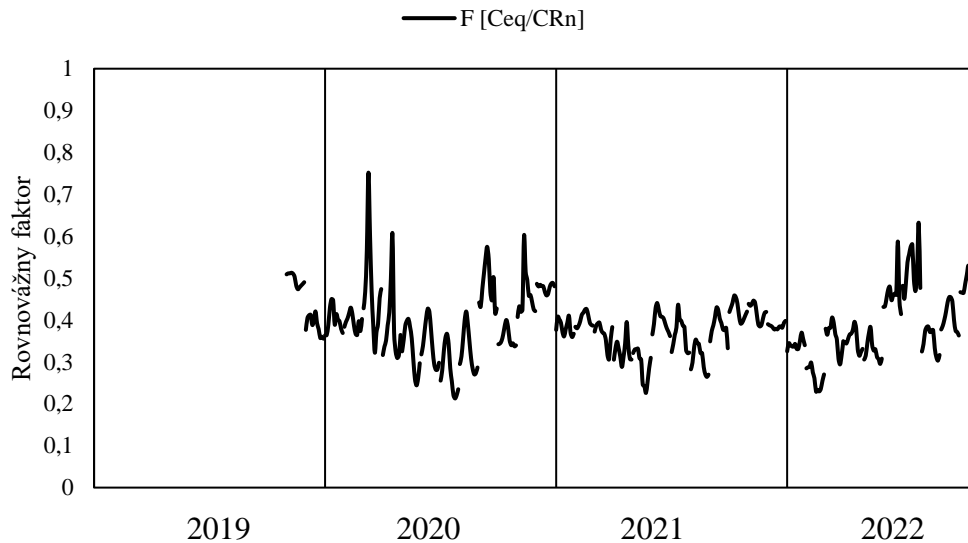
Z pomedzi krátkožijúcich produktov premeny radónu vykazovali najvyššiu priemernú hodnotu objemové aktivity <sup>214</sup>Pb ( $A = 5,45 \pm 0,87$  [Bq·m<sup>-3</sup>]) v novembri. Objemové aktivity <sup>218</sup>Po ( $A = 3,36 \pm 0,53$  [Bq·m<sup>-3</sup>]) boli o niečo nižšie, s najvyššou priemernou hodnotou opäť v novembri. Najvyššie priemerné mesačné hodnoty <sup>214</sup>Bi boli zaznamenané tiež v mesiaci november ( $A = 4,38 \pm 0,67$  [Bq·m<sup>-3</sup>]). Najnižšiu priemernú hodnotu dosiahli objemové aktivity <sup>214</sup>Pb ( $A = 1,89 \pm 0,47$  [Bq·m<sup>-3</sup>]) v apríli. Objemové aktivity <sup>218</sup>Po ( $A = 1,58 \pm 0,44$  [Bq·m<sup>-3</sup>]) boli o niečo nižšie, s najnižšou priemernou hodnotou rovnako v apríli. Najnižšie priemerné mesačné hodnoty <sup>214</sup>Bi boli dosiahnuté tiež v mesiaci apríl ( $A = 1,72 \pm 0,42$  [Bq·m<sup>-3</sup>]). Počas celého merania boli namerané stredné hodnoty objemovej aktivity <sup>218</sup>Po  $2,82 \pm 0,43$  [Bq·m<sup>-3</sup>], <sup>214</sup>Pb  $3,28 \pm 0,61$  [Bq·m<sup>-3</sup>] a <sup>214</sup>Bi  $2,78 \pm 0,47$  [Bq·m<sup>-3</sup>]. Zo stredných denných vln pre jednotlivé ročné obdobia môžeme konštatovať, že najvyššie priemerné hodnoty

pozorujeme v jesenných mesiacoch (september, október, november) a najnižšie v jarých mesiacoch (marec, apríl, máj).

**Tabuľka 12 Korelačný koeficient  $R^2$  charakterizujúci korelácie produktov premeny radónu s objemovou aktivitou radónu za obdobie 2019-2022.**

$R^2$	$C_{eq}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]	$C_{Po218}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]	$C_{Pb214}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]	$C_{Bi214}$ [Bq·m <sup>-3</sup> ]
Január	0,81	0,83	0,93	0,78
Február	0,82	0,97	0,81	0,87
Marec	0,96	0,99	0,95	0,95
Apríl	0,95	0,96	0,94	0,87
Máj	0,90	0,95	0,90	0,83
Jún	0,80	0,89	0,80	0,76
Júl	0,70	0,78	0,71	0,65
August	0,74	0,86	0,79	0,64
September	0,78	0,88	0,85	0,68
Október	0,80	0,95	0,86	0,78
November	0,97	0,95	0,91	0,90
December	0,57	0,66	0,77	0,80
<b>Celé obdobie</b>	<b>0,86</b>	<b>0,96</b>	<b>0,87</b>	<b>0,79</b>
Zima	0,87	0,90	0,96	0,94
Jar	0,94	0,98	0,92	0,88
Leto	0,75	0,85	0,77	0,68
Jeseň	0,91	0,97	0,89	0,79

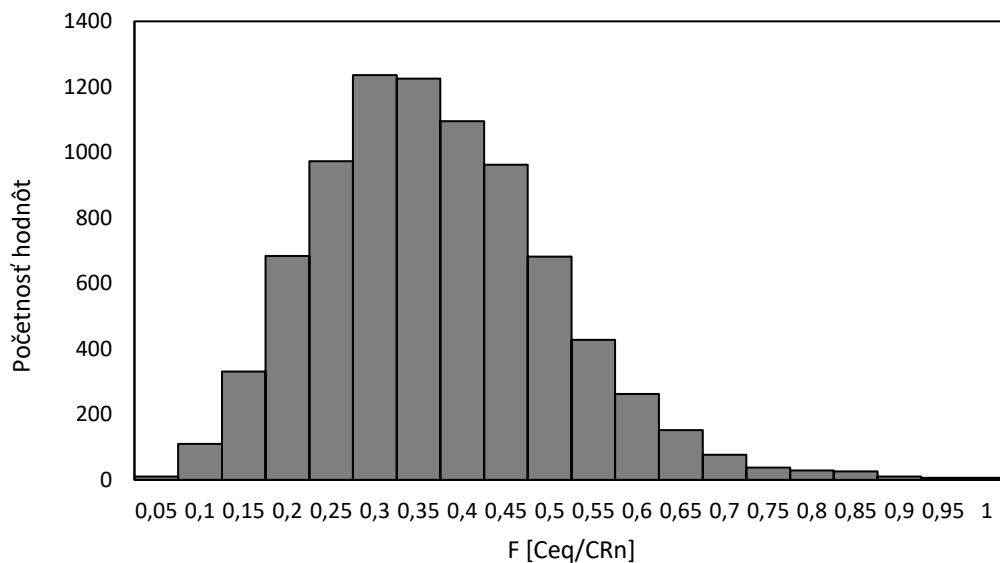
Porovnaním stredných denných priebehov EOAR a objemových aktivít jednotlivých krátko žijúcich produktov premeny s OAR môžeme skonštatovať, že výsledky sú vo výbornej zhode (Tabuľka 12). Korelačný koeficient strednej dennej vlny EOAR vypočítanej z celého obdobia v porovnaní s dennou vlnou OAR je  $R^2 = 0,86$ . Hodnota korelačného koeficienta krátko žijúcich produktov premeny je  $R^2 = 0,96$  pre  $^{218}\text{Po}$ ,  $R^2 = 0,87$  pre  $^{214}\text{Pb}$  a  $R^2 = 0,79$  pre  $^{214}\text{Bi}$ . Najsilnejšiu koreláciu pre EOAR je možné pozorovať v jarých mesiacoch ( $R^2 = 0,94$ ) hlavne v mesiacoch marec ( $R^2 = 0,96$ ) a apríl ( $R^2 = 0,95$ ). Najslabší korelačný faktor sa ukazuje v mesiaci december ( $R^2 = 0,57$ ) čo má ale súvis s neustále sa meniacimi meteorologickými podmienkami v spodnej časti atmosféry. Vplyv vybraných meteorologických parametrov bude opísaný v nasledujúcej časti.



**Obrázok 33** Priebek stredných denných vln rovnovážneho faktora  $F$  zo všetkých hodnôt počas rokov 2019 – 2022

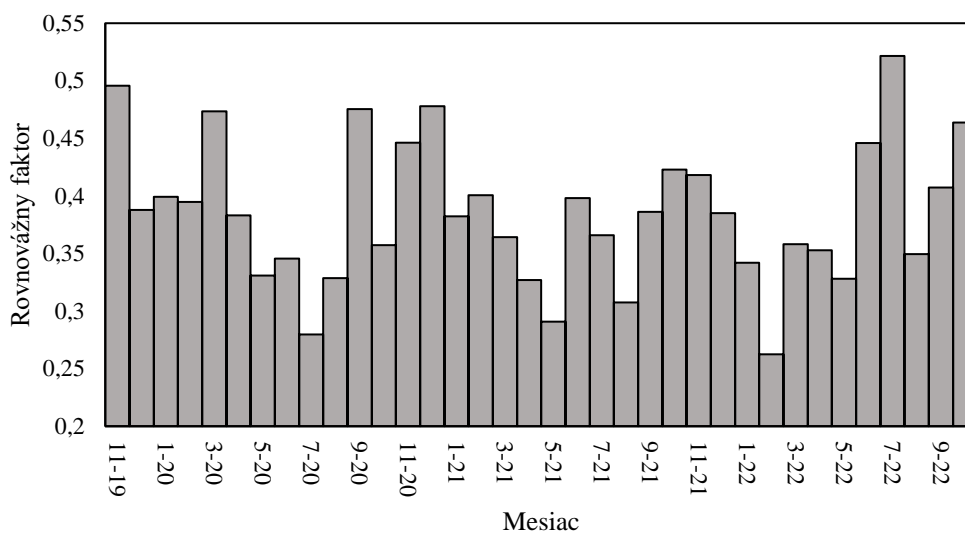
Na charakterizovanie úrovne rovnováhy medzi radónom a jeho krátko žijúcimi produktmi premeny slúži parameter rovnovážny faktor  $F$ . Stredný denný priebeh rovnovážneho faktora  $F$  zobrazený na Obrázku 33 bol napočítaný pre jednotlivé mesiace. Z obrázka vyplýva, že rovnovážny faktor dosahoval v jarňých a jesenných mesiacoch v roku 2020 vyššie maximá ako v ostatných rokoch. Tento efekt môžeme vysvetliť vplyvom meteorologických parametrov ktoré boli pre dané obdobie špecifické. Bližšie bude vplyv meteorologických parametrov preskúmaný v nasledujúcej kapitole.





**Obrázok 34** Frekvenčné rozdelenie hodnôt rovnovážneho faktora  $F$  určené zo všetkých hodnôt počas rokov 2019 – 2022.

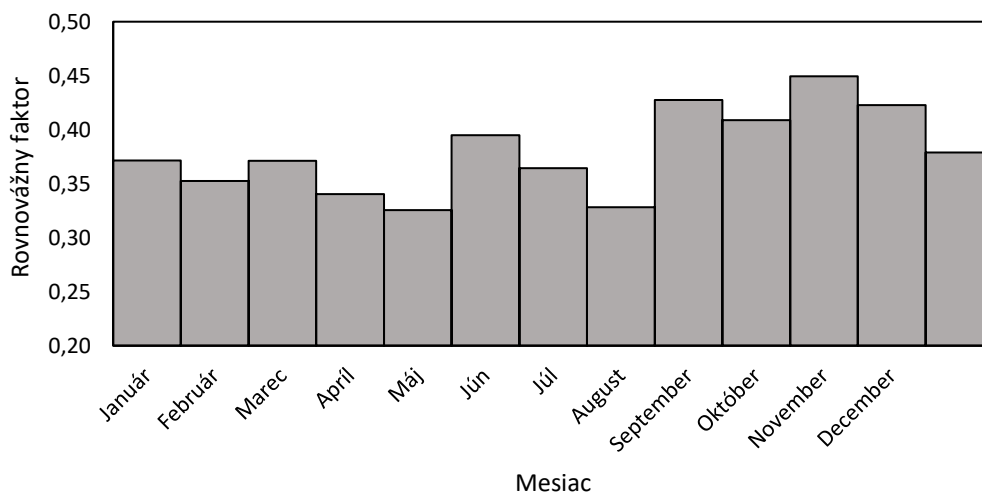
Zo všetkých údajov o rovnovážnom faktore  $F$  vypočítaných pre obdobie rokov 2019 – 2022, ktoré sú na Obrázku 34 je zobrazené frekvenčné rozdelenie početnosti hodnôt. Hodnoty rovnovážneho faktora boli rozdelené do intervalov  $0,05 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Stredná hodnota rovnovážneho faktora  $F$  počas celého obdobia bola  $F = 0,38$ .



**Obrázok 35** Stredné mesačné hodnoty rovnovážneho faktora  $F$  za obdobie rokov 2019-2022.

Podobné výsledky sezónnych variácií ekvivalentnej objemovej aktivity radónu a rovnovážneho faktora  $F$  boli opublikované v práci [HELEJ, 2019] Z obrázka 35 je

vidieť, že aj tento parameter vykazuje sezónne variácie. 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.



**Obrázok 36** Priemerné hodnoty rovnovážneho faktora  $F$  pre jednotlivé mesiace za obdobie rokov 2019-2022.

Na obrázku 36 je zobrazený priebeh stredných hodnôt rovnovážneho faktora  $F$  pre jednotlivé mesiace. Ako už bolo spomínané, meranie prebiehalo počas 36 mesiacov rokov 2019 – 2022, a všetky mesiace boli rovnako zastúpené. Najvyššia stredná hodnota rovnovážneho faktora  $F$  bola nameraná v mesiaci december ( $F = 0,42$ ). Maximálna hodnota rovnovážneho faktora bola nameraná v júli 2022 ( $F = 0,52$ ). Najnižšie stredné hodnoty boli namerané v máji a v auguste ( $F = 0,33$ ), s minimálnou hodnotou vo februári 2022 ( $F = 0,26$ ).

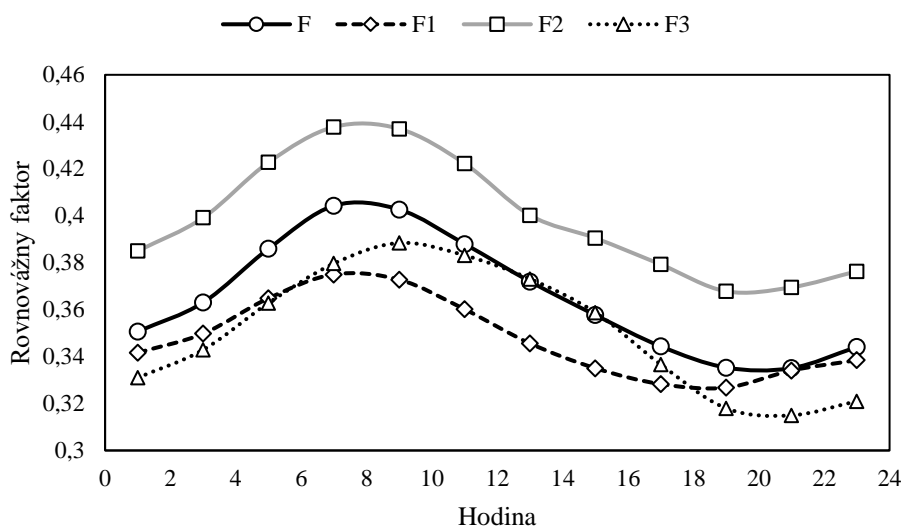
**Tabuľka 13** Stredné hodnoty rovnovážneho faktora pre jednotlivé mesiace.

	$F$	$F_1$	$F_2$	$F_3$
Január	0,37	0,31	0,40	0,33
Február	0,35	0,33	0,39	0,34
Marec	0,37	0,35	0,39	0,36
Apríl	0,34	0,30	0,34	0,32
Máj	0,33	0,33	0,34	0,31
Jún	0,39	0,34	0,39	0,36
Júl	0,36	0,32	0,34	0,32
August	0,33	0,32	0,34	0,31
September	0,43	0,44	0,48	0,43
Október	0,41	0,39	0,46	0,39
November	0,45	0,38	0,46	0,39
December	0,42	0,35	0,49	0,37
<b>Priemer</b>	<b>0,38</b>	<b>0,35</b>	<b>0,40</b>	<b>0,35</b>

Tabuľka 14 Stredné hodnoty rovnovážneho faktora pre jednotlivé ročné obdobia.

	$F$	$F_1$	$F_2$	$F_3$
Zima	0,38	0,33	0,43	0,35
Jar	0,35	0,33	0,36	0,33
Leto	0,36	0,32	0,36	0,33
Jeseň	0,43	0,40	0,47	0,40

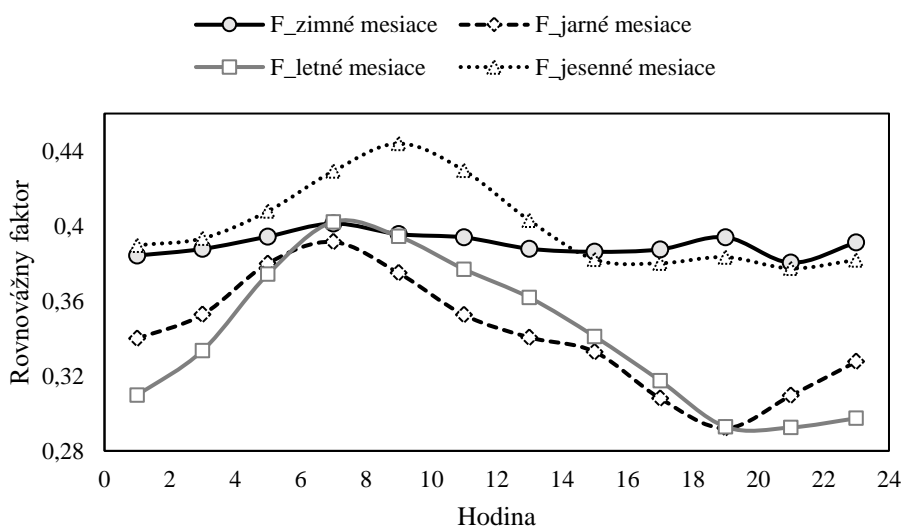
Stredné hodnoty rovnovážneho faktora  $F$  pre jednotlivé roky sú v dobrej zhode. V rokoch 2020 a 2021 prebiehalo meranie kontinuálne počas celých dvanástich mesiacov. V oboch rokoch bola stredná ročná hodnota rovnovážneho faktora  $F = 0,38$ . Stredná ročná hodnota v roku 2022 je najnižšia, no treba brať do úvahy, že nám v štatistike chýbajú 2 mesiace (november a december) počas ktorých je stredná mesačná hodnota najvyššia. V roku 2019 bol detekčný systém uvedený do prevádzky v novembri. Preto je hodnota  $F = 0,45$  v tomto roku vyššia ako stredná ročná hodnota za celé obdobie. 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 jarných a letných mesiacoch.



Obrázok 37 Stredný denný priebeh rovnovážneho faktora  $F$ ,  $F_1$ ,  $F_2$  a  $F_3$  za obdobie rokov 2019-2022.

Keď sa bližšie pozrieme na priebeh strednej dennej vlny na obrázku 37, môžeme pozorovať, že hodnota rovnovážneho faktora  $F$  podstupuje denné variácie, ktoré sú spojené s dennou variáciou radónu. V skorých ranných hodinách hodnoty rastú a dosahujú maximum o siedmej hodine ránej. Krátko po východe slnka je

možné pozorovať klesajúci trend týchto hodnôt. Stredná denná vlna rovnovážneho faktora dosahuje minimum o 21:00. V neskorších večerných hodinách hodnoty znovu stúpajú. V porovnaní s radónovou vlnou sú minimálne hodnoty rozťahnuté až do skorých ranných hodín.

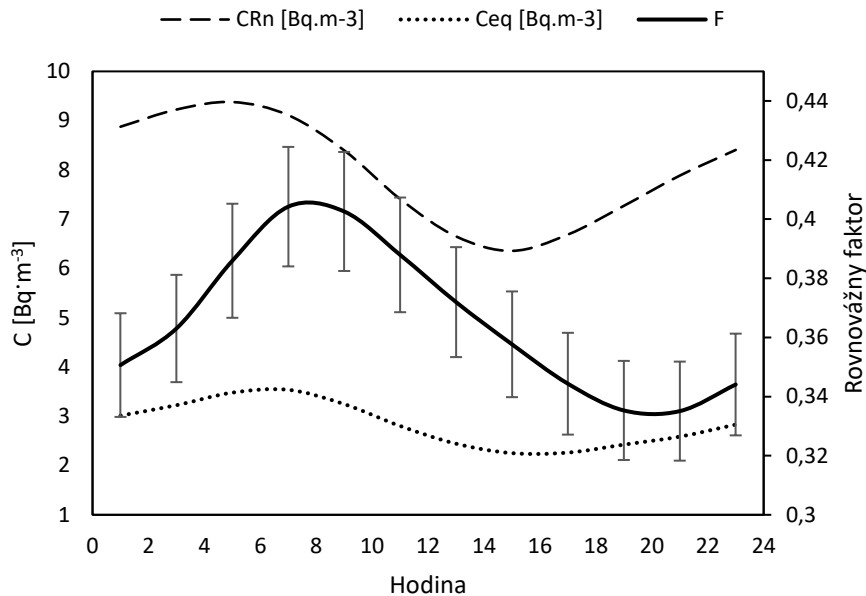


Obrázok 38 Stredný denný priebeh rovnovážneho faktora  $F$  počas zimných, jarných, letných a jesenných mesiacov za obdobie rokov 2019-2022.

V jednotlivých ročných obdobiach sa stredná denná vlna rovnovážneho faktora výrazne mení. Vplyv na túto zmenu majú hlavne meniace sa podmienky v spodnej časti atmosféry spôsobené zmenou meteorologických parametrov. Zatiaľ čo jarná denná vlna je svojím priebehom najviac podobná strednému ročnému priebehu, s maximálnou hodnotou o 07:00 a minimálnou hodnotou o 19:00, letná denná vlna je už odlišná v oblasti minimálnych hodnôt. Môžeme pozorovať, že hodnota denného minima je rozťahnutá od 19:00, kedy prvýkrát dosiahne minimum až do 01:00 hodiny ránej, kedy začne stúpať. Tento rozdiel medzi jarným a letným denným priebehom je spôsobený rozdielom medzi maximálnou a minimálnou teplotou v danom ročnom období. Tieto vplyvy meteorologických parametroch budú popísané v nasledujúcej kapitole. Pre jesenné a zimné mesiace je typická vyššia stredná hodnota rovnovážneho faktora  $F$ . Jesenná denná vlna má maximum o 09:00. Oblasť minimálnych hodnôt dosahuje okolo 15:00 poobede a ťahá sa až do skorých ranných hodín (~ 01:00). V zimných mesiacoch je pomer medzi OAR a EOAR konštantný počas celého dňa.

Denné variácie OAR a EOAR [UNSCEAR, 1988] sú všeobecne známe. Vie sa, že vznikajú v dôsledku denného slnečného cyklu a procesov vertikálneho miešania v atmosfére. Hattori a kol. [2011] a Kojima [2012] boli prví, kto skúmali potenciálne analogické denné správanie rovnovážneho faktora vo vonkajšej atmosfére, počas viac ako jedného roka. Zatiaľ čo Kojima hlásil denné variácie s maximom od noci do skorého rána a široké minimum počas dňa, Hattori a kol. nepozorovali vôbec žiadnu jasnú dennú variáciu  $F$ .

Keď zoberieme do úvahy údaje z analýzy denných vln EOAR, OAR a rovnovážneho faktora z 36 po sebe idúcich mesiacov (Obrázok 38.) a porovnáme si ich priebehy, môžeme konštatovať, že priemerná denná vlna objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  ( $C_{\text{Rn}}$ ) 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 maximom 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 minimum neskoro večer až skoro ráno ( $F=0,33$ ). Priemerné denné vlny  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$  majú podobný priebeh s maximom v skorých ranných hodinách a minimum popoludní.

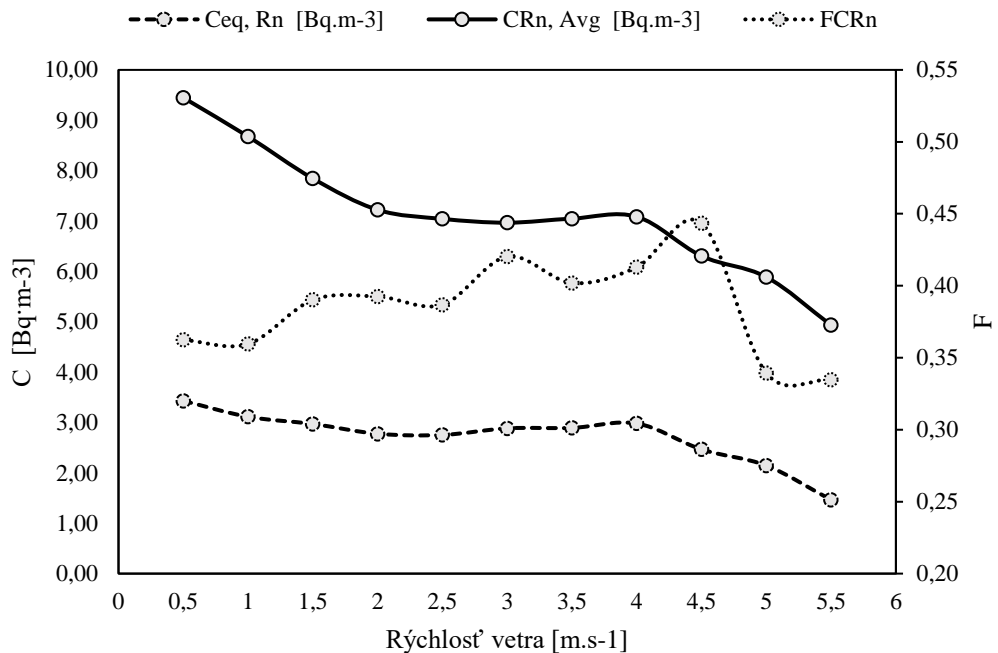


Obrázok 39 Stredný denný priebeh EOAR, OAR a  $F$ .

V kapitole 5.3.1. boli predstavené výsledky vybraných dlhodobých meraní rovnovážneho faktora. Konštatujeme dobrú zhodu s výsledky iných autorov. Zaujímavé je porovnanie s historickými meraniami na KJFB. Holý a kol. [2003] namerali hodnoty  $F$  v mesiaci júl  $\approx 0,35$ , pričom priemerné hodnoty  $F$  pre celé sledované obdobie (4.7. – 20.9. 2003) sa pohybovali na úrovni 0,5. Z našich dlhodobých meraní vychádzajú hodnoty  $F$  v mesiaci júl  $\approx 0,33$ . O čosi nižšie hodnoty sme namerali aj oproti výsledkom s nemeckého Neuherbergu. V priemere sa tu denná hodnota  $F$  pohybovala od 0,55 v noci do 0,72 na poludnie. Toto správanie je zjavne v kontraste s výsledkami Kojima [2011], ktorý uvádza denné variácie s minimom počas dňa a  $F = 0,51$  v porovnaní s faktorom  $F = 0,63$  v Neuherbergu.

Tieto výsledky však nemožno priamo porovnávať kvôli rôznym prostrediam, ako napríklad vplyv oceánu na turbulentné premiešavanie vzduchu v Tokiu. Základným dôvodom týchto rozdielov môžu byť rozdielne turbulentné sily pôsobiace v rôznych časoch na oboch miestach. Kojima [2011] uviedol, že počasie v Tokiu sa vyznačuje vysokou rýchlosťou vetra počas dňa smerom od mora a slabým vetrom od pevniny. Nakoľko je všeobecný trend, že zvyšujúce sa premiešavanie vzduchu znižuje rovnováhu medzi radónom a jeho produktami premeny, môže byť táto skutočnosť hlavnou príčinou nízkych hodnôt  $F$  počas dňa a nižšej strednej ročnej hodnoty  $F$

všeobecne. Podľa predpokladov, ktoré vychádzajú s práce Jacobiho a Andre [1962] je rovnováha medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátko žijúcimi produktmi premeny v prízemnej časti atmosféry závislá od turbulentného premiešavania. Zmiešavacie procesy sú okrem iných faktorov aj funkciou rýchlosti vetra.



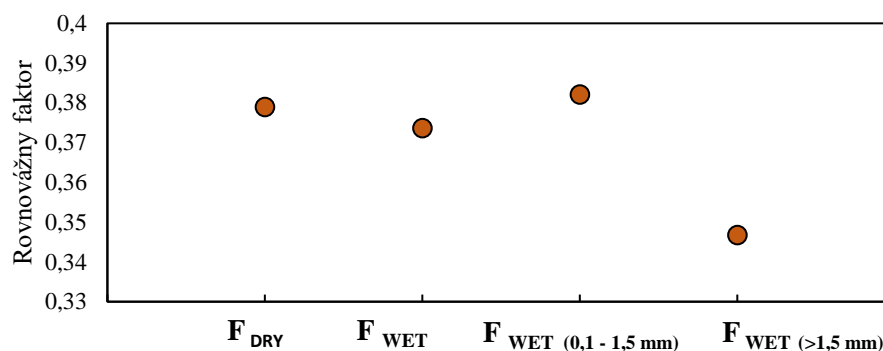
Obrázok 40 EOAR, OAR a  $F$  v závislosti od rýchlosti vetra

Z nameraných údajov o rýchlosti vetra sme vypočítali stredné hodnoty pre 2-h meracie intervaly. Tie boli zoradené do 11 rýchlostných tried v rozmedzí od 0 do 5,5  $\text{m s}^{-1}$ . Všetky priemerné hodnoty OAR, EOAR a  $F$  v príslušných triedach boli potom spriemerované a výsledné stredné hodnoty boli stanovené ako funkcie rýchlosti vetra. Ako sa očakávalo, a ako je možné vidieť na Obrázku 40, EOAR a OAR najprv so zvyšujúcou sa rýchlosťou vetra, teda so zvyšujúcim sa premiešavaním, klesajú. OAR od 2  $\text{m.s}^{-1}$  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, kedy je radón a jeho produkty premeny transportovaný k odberovému miestu z okolia. Až pri rýchlostiach vetra  $> 4 \text{ m.s}^{-1}$  začne opäť prevládať vertikálny transport a pozorujeme opätovné klesanie hodnôt EOAR a OAR.

Na druhej strane,  $F$  sa prirodzene zvyšuje z približne 0,37 pri bezvetří na 0,44 pri  $4,5 \text{ m.s}^{-1}$ . Pri rýchlostiach vetra vyšších ako  $4,5 \text{ m.s}^{-1}$  pozorujeme opätovný pokles  $F$ , až na hodnotu 0,33 pri  $5,5 \text{ m.s}^{-1}$ . Potvrďuje sa tak všeobecný trend, že rastúce premiešavanie vzduchu znižuje rovnováhu medzi radónom a jeho produktmi premeny.  $F$  vykazuje denné variácie s výraznými maximálnymi hodnotami v neskorších ranných hodinách, t.j. v čase, keď ešte nedochádza k intenzívnemu vertikálnemu premiešavaniu (Obr. 37). V podmienkach silného atmosférického premiešavania (napr. vysoká rýchlosť vetra, silný dážď), sa  $F$  počas dňa výrazne menilo. Z týchto pozorovaní možno konštatovať, že  $F$  sa zvyšuje v ranných hodinách a klesá v poobedných hodinách iba vtedy, keď poobede dominuje vertikálne premiešavanie. Vysvetlením tohto správania je preferenčný vertikálny transport radónu zo spodnej vrstvy atmosféry, a teda jeho úbytok voči produktom premeny. Pretože radón sa v atmosfére nachádza v plynnom skupenstve, vertikálne premiešavanie rozptyľuje radón rýchlejšie ako jeho produkty premeny viazané na prachové častice, pretože tie sú vplyvom gravitácie unášané smerom k zemskému povrchu.

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 (dážďom) a v menšej miere suchou depozíciou [PORSTENDÖRFER, 1994]. 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 mm ( $F_{WET(0,1 - 1,5 \text{ mm})}$ ) a v dňoch so zrážkami  $> 1,5$  mm ( $F_{WET(> 1,5 \text{ mm})}$ ). Ďalšia skupina bola s hodnotami  $F$  pozorovanými počas suchých dní ( $F_{DRY}$ ). Celkovo sme porovnali hodnoty rovnovážneho faktora s 9820 dvojhodinovými údajmi o úhrne zrážok v [mm]. Z toho 1088 bolo  $> 0,1$ . Výsledky sú uvedené na Obrázku 41.





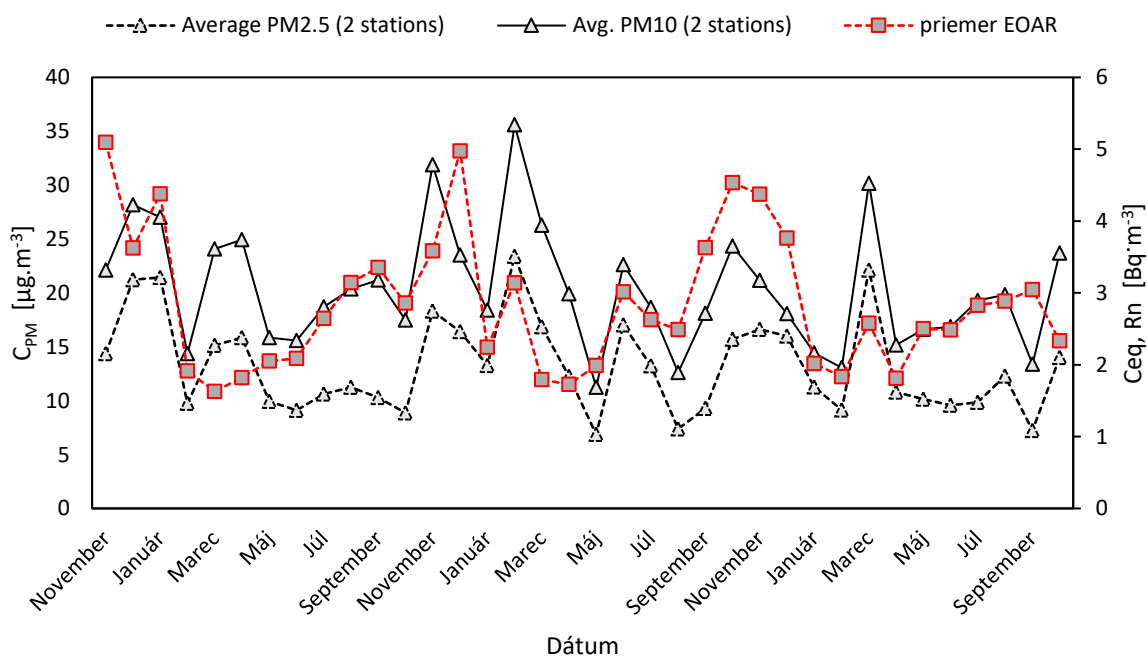
Obrázok 41 stredné hodnoty  $F$ ,  $F_{DRY}$ ,  $F_{WET}$ ,  $F_{WET (> 1,5 mm)}$  a  $F_{WET (0,1 - 1,5 mm)}$ .

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 ( $F_{DRY} = 0,38$ ). Rovnako konštatovali správanie rovnovážneho faktora aj iní autori [PORSTENDÖRFER, 1999; WINKLER, 2001]. 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. Celkovo máme k dispozícii takýchto iba 233 dvojhodinových údajov. 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 podmienčne 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  $F_{WET (0,1 - 1,5 mm)} > F_{DRY}$ .

### 5.2.3. Štúdium vzťahu medzi radónom, jeho produktami premeny a koncentráciou prachových častíc v atmosfére.

Údaje o OAR a EOAR boli porovnané s výsledkami merania koncentrácie pevných častíc v ovzduší Bratislavy. Pevné častice a aerosóly ovplyvňujúce kvalitu ovzdušia postihuje v atmosfére rovnaký osud ako produkty premeny radónu a rovnako

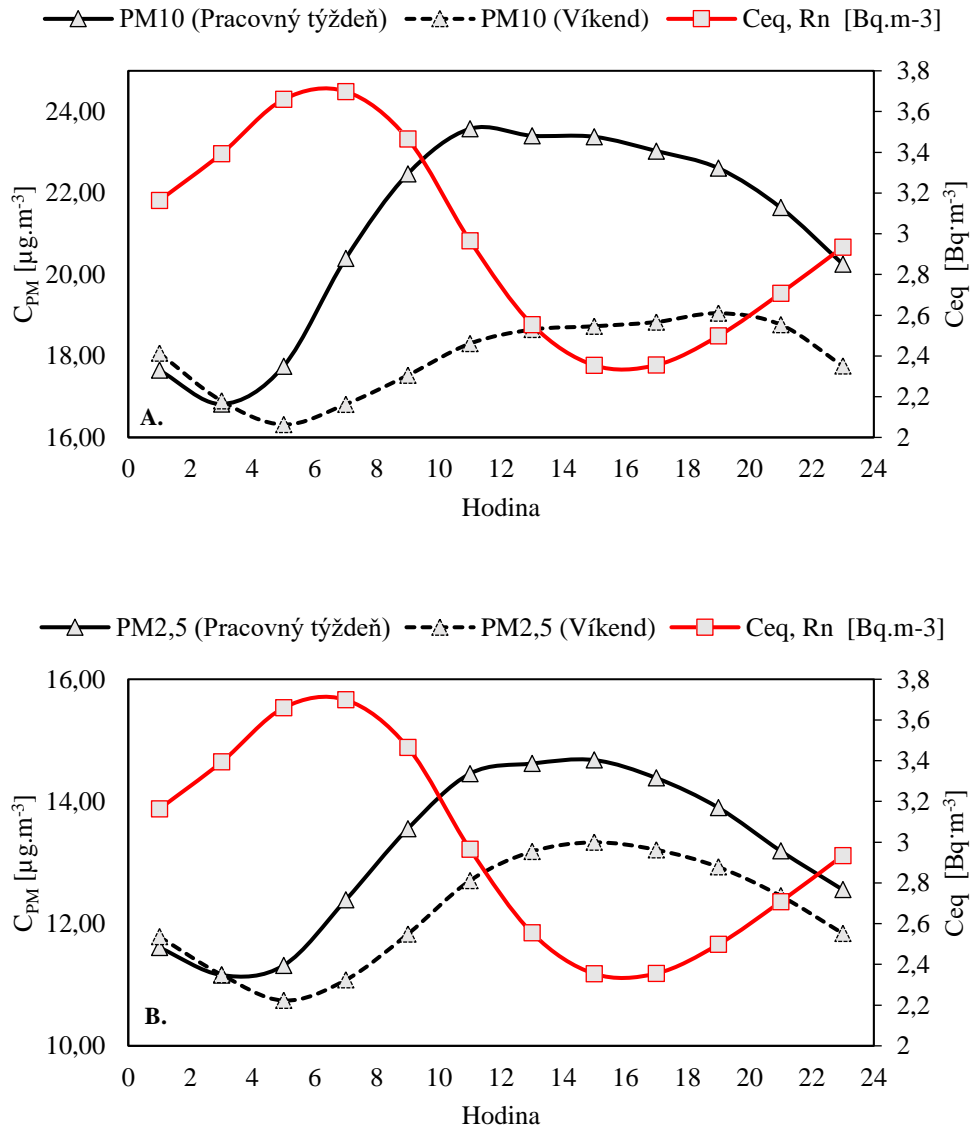
aj radón. Koncentrácie látok znečisťujúcich ovzdušie (t.j.  $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$ ) boli kontinuálne merané na staniciach na Jeséniovej ulici a Trnavskom mýte v Bratislave oddelením kvality ovzdušia Slovenského hydrometeorologického ústavu (SHMÚ). Koncentrácie  $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$  získané z týchto dvoch staníc boli spriemerované a použité pre porovnania s EOAR nameranej na FMFI UK. Meracie miesta monitorujúce kvalitu ovzdušia sú od seba vzdialené približne 2,5 km a od FMFI UK približne 3,5 km. Výsledky týchto paralelných meraní v atmosfére Bratislavy počas rokov 2020-2022 sú zobrazené na Obrázku 42. 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- $PM_{10}$  aj EOAR- $PM_{2,5}$ .



Obrázok 42 Priebeh stredných mesačných hodnôt  $PM_{2,5}$ ,  $PM_{10}$  a EOAR

Stredné mesačné hodnoty koncentrácie  $PM_{2,5}$  a  $PM_{10}$  namerané počas teplého letného obdobia sú nižšie ako počas zimného obdobia, s priemernými hodnotami 18,0 a 10,1  $\mu g \cdot m^{-3}$  ( $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$ ). Najvyššie koncentrácie boli namerané v decembri 2021 (35,6  $\mu g \cdot m^{-3}$  pre  $PM_{10}$  a 23,4  $\mu g \cdot m^{-3}$  pre  $PM_{2,5}$ ). Porovnanie pomeru  $PM_{2,5}$  až  $PM_{10}$  medzi ročnými obdobiami ukazuje, že pomer  $PM_{2,5}$  až  $PM_{10}$  je počas zimného

obdobia výrazne vyšší v chladných jarných mesiacoch a v zimných mesiacoch (0,73 a 0,69) ako v lete a na jeseň (0,55 a 0,58). Pre lepšie pochopenie správania sa aerosólov v atmosfére počas dňa sú na Obrázku 43 zobrazené stredné denné priebehy všetkých troch sledovaných parametrov.



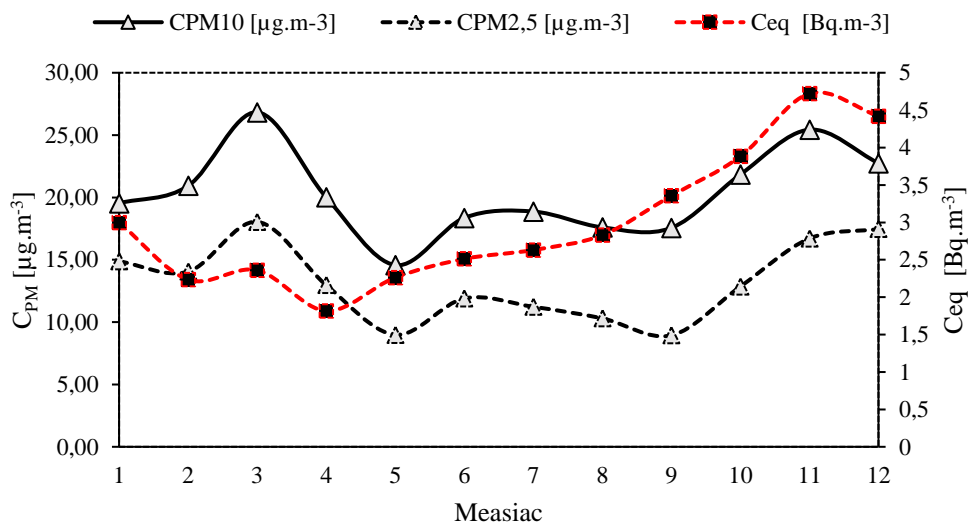
Obrázok 43 Stredný denný priebeh (A) PM10; (B) PM2,5 a EOAR počas pracovného týždňa a počas víkendu.

Denná variácia koncentrácie PM<sub>2,5</sub> a PM<sub>10</sub> je počas pracovných dní výraznejšia než počas víkendu, čo je spôsobené hlavne väčšou intenzitou cestnej premávky počas pracovných dní. Z výsledkov môžeme tiež konštatovať, že počas dňa je v porovnaní s nocou koncentrácia častíc PM<sub>2,5</sub> o 4,2% vyššia a koncentrácia častíc

PM<sub>10</sub> o 12% vyššia. Pozorujeme tak antikoreláciu denných priebehov v porovnaní s EOAR ( $R^2 = 0,66$  pre dvojicu EOAR-PM<sub>2,5</sub> a  $R^2 = 0,53$  pre EOAR-PM<sub>10</sub>).

Doobedňajšie zvýšenie koncentrácie a maximálne hodnoty dosahované okolo 15. hodiny bolo pozorované aj v literatúre pre prvky Fe, Cu, Zn a Pb. Tieto prvky sa bežne vyskytujú v aerosóloch, ktorých zdrojom je doprava [WECKWERTH, 2001]. Dôvodom je relatívny nárast emisií v skorých ranných hodinách a relatívny pokles emisií počas noci. Analýzou našich denných vln sa ukázalo, že denné priebehy PM a EOAR sú v najlepšej zhode počas dní pracovného pokoja ( $R^2 = 0,89$  pre PM<sub>2,5</sub> a  $R^2 = 0,88$  pre PM<sub>10</sub>). Obzvlášť vysoký je korelačný faktor  $R^2 = 0,93$  a  $0,95$  pre porovnanie priebehov PM<sub>2,5</sub> a PM<sub>10</sub>.

V jarných mesiacoch, kedy na zem dopadá už väčšie množstvo slnečného svitu a procesy premiešavania v spodnej časti atmosféry sú podporované pozorujeme najnižší korelačný faktor  $R^2 = 0,04$  (PM<sub>2,5</sub>) a  $R^2 = 0,03$  (PM<sub>10</sub>) voči EOAR. Zozbierané údaje o stredných koncentráciách PM<sub>2,5</sub> a PM<sub>10</sub> sú uvedené na obrázku 44.

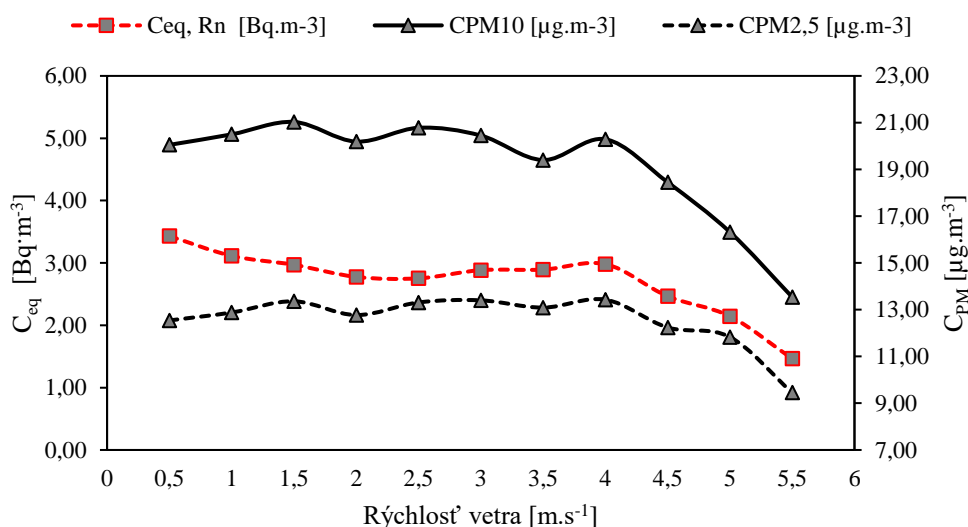


Obrázok 44 Priebeh stredných mesačných hodnôt PM<sub>2,5</sub>, PM<sub>10</sub> a EOAR.

Prachové častice PM<sub>10</sub> ktoré sú zložené z častíc s aerodynamickým priemerom menším ako 10 µm sú podobne ako produkty premeny radónu odstraňované z atmosféry procesmi suchej a mokrej depozície. Minimálne koncentrácie PM pozorujeme v máji. Analýza meteorologických dát ukázala, že tento mesiac sa vyznačuje najvyššou intenzitou zrážok a je charakterizovaný vyššou vlhkosťou

vzduchu a hmlistými nocami. Rovnaký pokles vidíme aj v mesiaci september, čo je mesiac s druhým najvyšším úhrnom zrážok.

Reakcia PM častíc na odstraňovanie suchou depozíciou, ktorú spôsobuje zvýšená rýchlosť vetra, bola otestovaná podobne ako v tejto kapitole vyššie (Obrázok 45).



Obrázok 45 EOAR, PM<sub>2,5</sub> a PM<sub>10</sub> v závislosti od rýchlosti vetra.

Konštatujeme že vplyv rýchlosti vetra na odstraňovanie PM častíc je pozorovateľný najmä v oblasti rýchlosti vetra vyššej ako 4 m.s<sup>-1</sup> s poklesom viac ako 30%. U EOAR dochádza k poklesu až o 50%. Najvyššie rýchlosti vetra pozorujeme v poobedných hodinách. Hodnoty EOAR vtedy prudko klesajú, zatiaľ čo koncentrácia častíc PM klesá iba pozvoľna alebo dokonca narastá, čo je dôsledkom intenzívnej cestnej premávky popoludní.

V tejto kapitole bolo bližšie preskúmané a porovnané správanie EOAR a častíc PM v atmosfére, ktorej podmienky sa každodenne menia. Poukazujeme tiež na to, že intenzita riedenia atmosféry významne ovplyvňuje koncentráciu polutantov. Počas sledovaného obdobia bolo možné pozorovať stabilné podmienky v atmosfére od neskorých poobedných až do skorých ranných hodín. Stabilné podmienky v spodnej časti atmosféry mali za následok nárast EOAR počas noci, ale neboli dostačujúce na to, aby prevládli nad procesmi odstraňovania PM. Počas nočných hodín preto pozorujeme pokles koncentrácie PM. Z uvedených výsledkov konštatujeme, že priebeh hodnôt koncentrácie prachových častíc PM vykazuje variáciu. Dobson a kol.

vo svojej práci [DOBSON, 2021] preskúmali koncentrácie častíc PM v 23 mestách na celom svete a výraznú dennú variáciu pozorovali len v málo prípadoch. Rozdiel medzi maximálnou a minimálnou hodnotou PM<sub>2,5</sub> bol v priemere 3,1  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Pre porovnanie v Londýne bola táto hodnota 2,8  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Každé jedno z pozorovaných miest vykazovalo zvyšujúce sa hodnoty v skorých ranných hodinách ako reakciu na rannú premávku.

#### 5.2.4. Vzťah medzi radónom, jeho produktami premeny, koncentráciou prachových častíc a meteorologickými parametrami

V predchádzajúcich kapitolách boli spracované a interpretované dáta z kontinuálneho monitorovania rádioaktivity atmosféry počas 36 po sebe idúcich mesiacov. Štúdium radónu a jeho produktov premeny je navzájom neoddeliteľné a ako bolo v práci spomenuté, vdychovanie radónu a jeho produktov premeny má za následok najväčší príspevok k efektívnej dávke u človeka. Okrem toho boli v práci predstavené aj iné aplikácie radónu a iných rádio aerosólov v atmosfére.

Objemová aktivita produktov premeny radónu sa v čase mení a je závislá od zmiešavacích podmienok v atmosfére, ktoré sú funkciou teploty, relatívnej vlhkosti, tlaku a tiež od procesov, ktoré sa podieľajú na ich odstraňovaní z prízemnej vrstvy atmosféry, ako napríklad rýchlosť vetra a zrážky. Jeden z cieľov tejto práce bolo preskúmanie správania sa rádioaktívnych aerosólov v atmosfére.

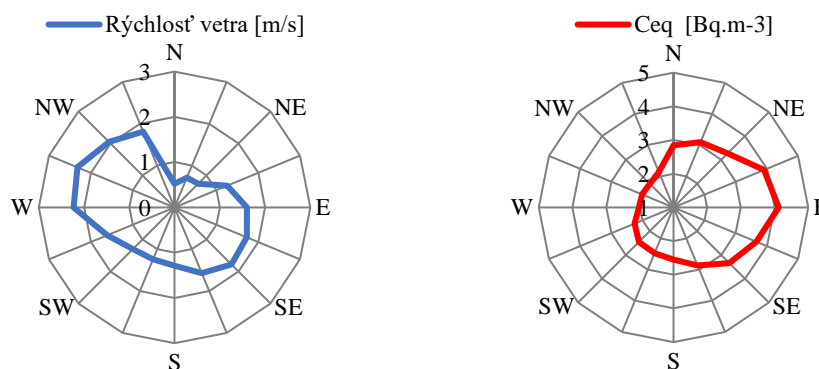
V tabuľke 15 sú uvedené stredné mesačné hodnoty meteorologických parametrov ako je tlak, relatívna vlhkosť, rýchlosť vetra, a úhrn zrážok merané paralelne s monitorom RPR a radónu.

**Tabuľka 15 Stredné mesačné hodnoty vybraných meteorologických parametrov počas sledovaného obdobia 36 mesiacov obdobia**

Mesiac	Tlak [hPa]	Vlhkosť [%]	T [°C]	Rýchlosť vetra [m/s]	Zrážky [mm]
Január	996,09	84,39	1,04	1,90	0,08
Február	998,20	72,29	4,43	2,22	0,06
Marec	998,57	59,13	6,76	1,84	0,06
Apríl	993,82	59,33	10,69	1,89	0,06
Máj	993,64	70,67	14,27	1,61	0,21
Jún	993,48	67,81	21,33	1,44	0,15
Júl	993,84	62,17	22,05	1,33	0,10
August	993,61	70,02	21,53	1,27	0,16
September	995,42	75,08	16,50	1,29	0,17
Október	997,12	83,57	11,77	1,51	0,13

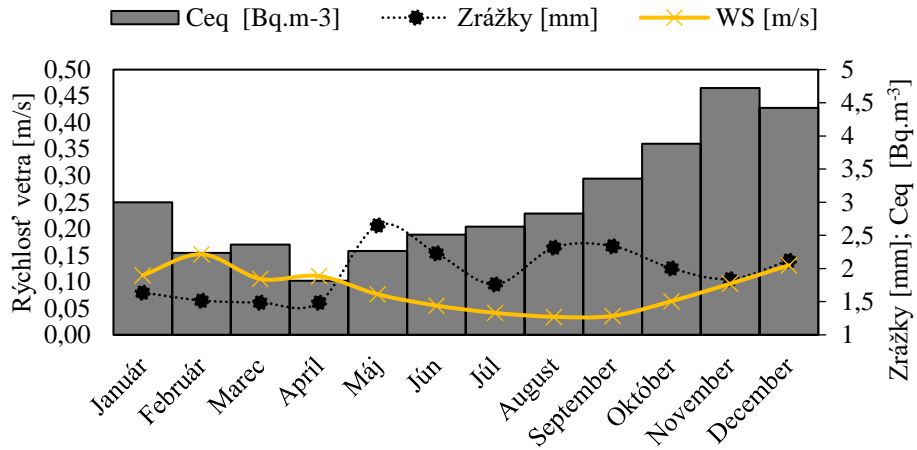
November	995,00	92,70	6,31	1,77	0,11
December	993,40	93,21	2,66	2,05	0,14
Celkovo	995,18	74,20	11,61	1,68	0,12

Ako bolo uvedené v kapitole (5.2.1 a 5.2.2.), najvyššie objemové aktivity radónu a jeho krátko žijúcich produktov premeny boli namerané v chladných mesiacoch a to hlavne v jesenných. Pre tieto mesiace boli typické časté teplotné inverzie v spojení so stabilnou atmosférou, nízkym vertikálnym premiešavaním vzduchu a kladným teplotným potenciálom. Rýchlosť vetra, ktorá ovplyvňuje stabilitu atmosféry bola najvyššia v zimných mesiacoch so strednou hodnotou  $WS = 2,05$  [m/s] a najnižšia v letných ( $WS = 1,35$  [m/s]) a smer fúkania vetra bol prevažne zo západu až severozápadu, v menšej miere bol pozorovaný a juhozápadný vietor.



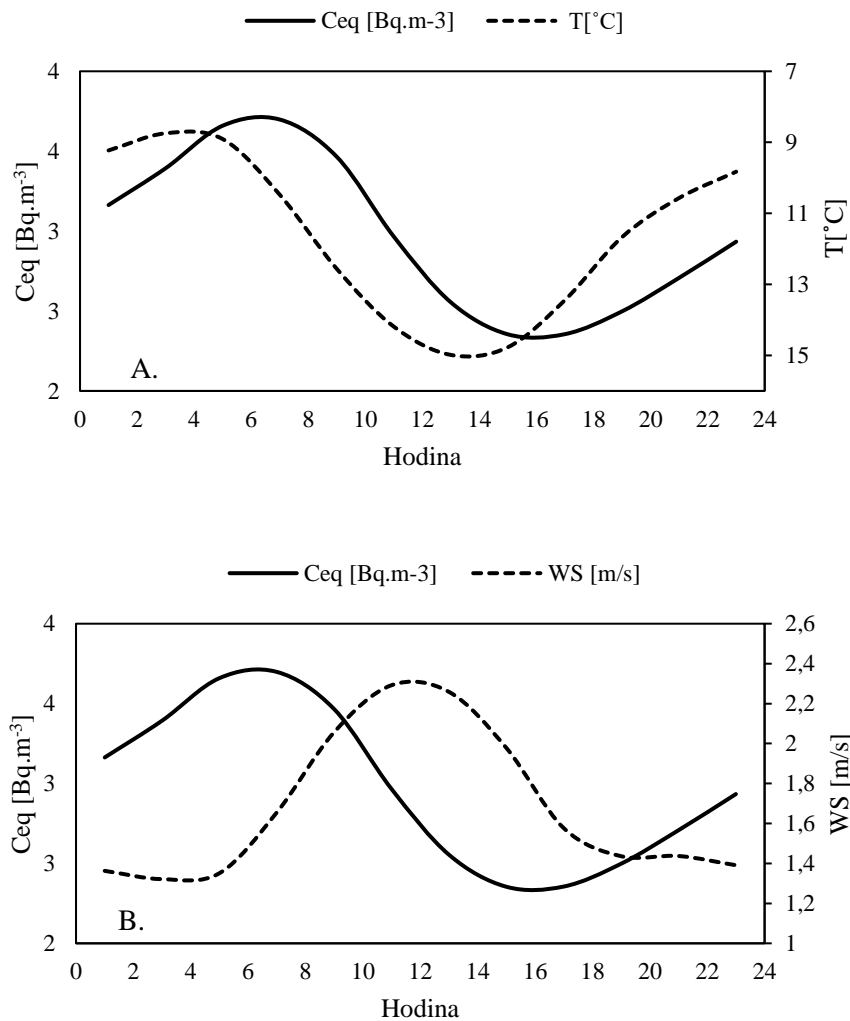
**Obrázok 46 Smerové rozloženie rýchlosti vetra a EOAR.**

Najvyššia relatívna vlhkosť bola nameraná v jesenných a zimných mesiacoch. V teplejších letných mesiacoch bola zvýšená v mesiaci máj a august, a to hlavne kvôli najvyššiemu úhrnu zrážok, vyššie hodnoty boli pozorované aj v septembri (Obrázok 47).

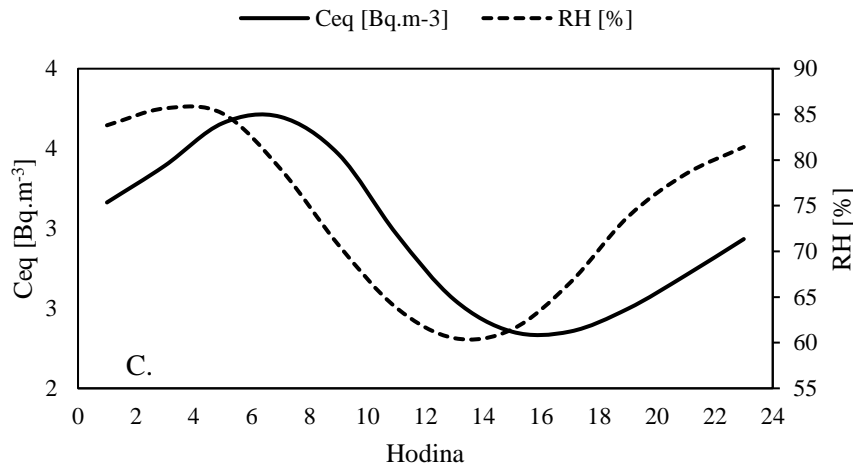


Obrázok 47 Stredné mesačné hodnoty rýchlosti vetra, úhrnu zrážok a EOAR pre celé sledované obdobie medzi rokmi 2019 – 2022.

Na Obrázku 48 sú porovnané stredné denné vlny EOAR, teploty, relatívnej vlhkosti vzduchu a rýchlosti vetra vypočítané pre celé obdobie.



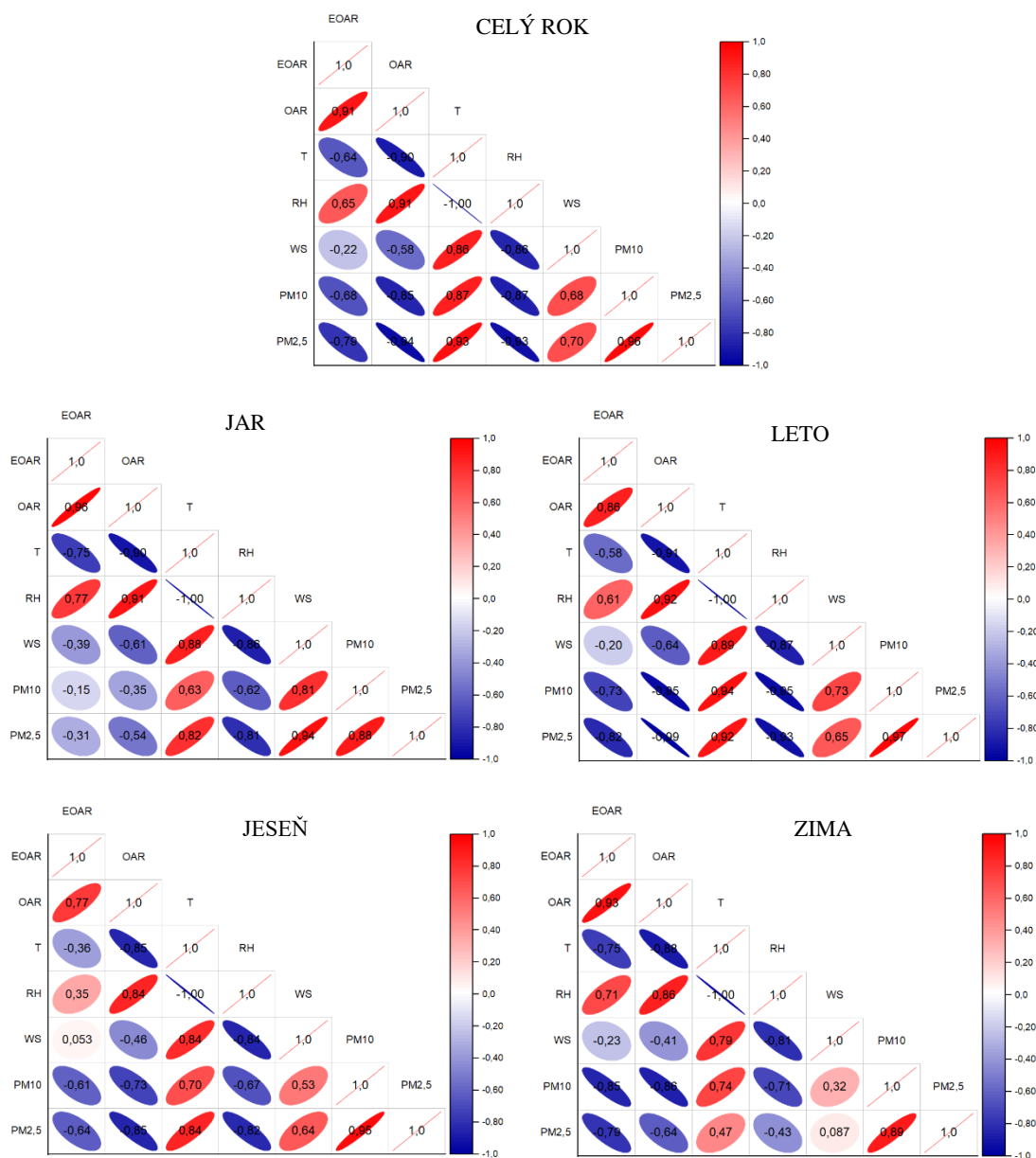




**Obrázok 48** Stredný denný priebeh EOAR a (A) teploty; (B) rýchlosti vetra; (C) relatívnej vlhkosti a za celé sledované obdobie 36 mesiacov.

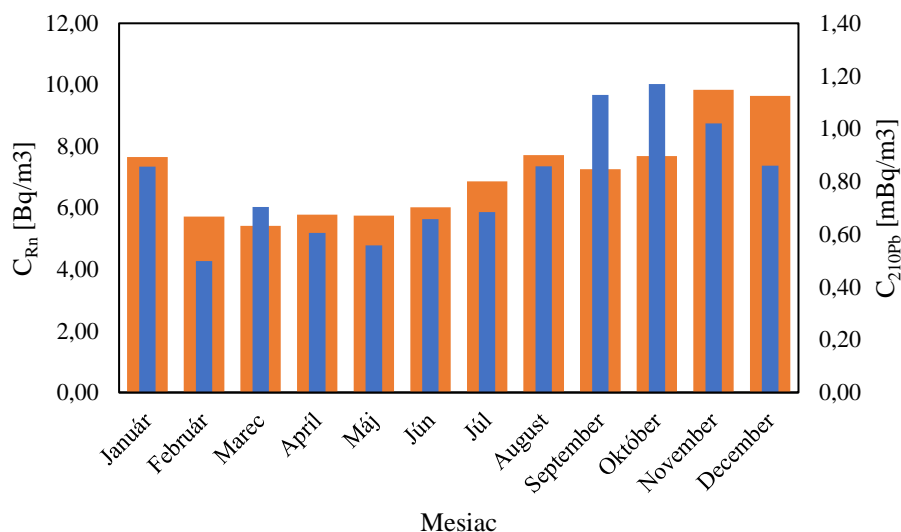
Na určenie vzťahu medzi sledovanými veličinami a meteorologickými parametrami boli vykonané korelačné analýzy stredných mesačných denných vln, ktorých výsledky sú pre 4 ročné obdobia zhrnuté v Tabuľke 16. EOAR aj OAR vykazujú pozitívne korelácie s relatívnou vlhkosťou (RH). Korelačné koeficienty s vlhkosťou pre EOAR boli v zime ( $R^2 = 0,71$ ) a na jar ( $R^2 = 0,77$ ) vyššie ako v lete ( $R^2 = 0,61$ ) a na jeseň ( $R^2 = 0,35$ ). Táto závislosť na ročnom období je silne spojená so strednou dennou teplotou v danom ročnom období a s dĺžkou slnečného svitu a dá sa povedať, že je akýmsi indikátorom vertikálneho zmiešavania. Analýzou stredných denných vln bolo dokázané, že v porovnaní s radónom reagujú jeho produkty premeny a prachové častice na zmenu zmiešavacích podmienok v atmosfére pomalšie, a že tento časový posun je závislý na veľkosti prachových častíc. Silnú závislosť je možné vidieť medzi  $PM_{2,5}$ ,  $PM_{10}$  a teplotou ( $R^2 = 0,92$  a  $R^2 = 0,94$ ) počas letného obdobia. Počas jarných mesiacov je táto korelácia najslabšia. EOAR koreluje s koncentráciou PM najlepšie v letných a zimných mesiacoch, najmenej na jar. Počas sledovaného obdobia prevažoval trend zvýšenej rýchlosti vetra počas dňa a pokojnejšie podmienky boli počas noci. Tento efekt je následok výmeny vzdušnej masy spustenej ohrievaním atmosféry po východe slnka. Vietor napomáha rozptylu radónu a jeho produktov premeny, čo má za následok pokles ich objemových aktivít v prízemnej vrstve atmosféry. Najvýznamnejšia antikorelácia s rýchlosťou vetra bola pre EOAR pozorovaná v mesiaci december ( $R^2 = -0,28$ ). OAR,  $PM_{2,5}$  a  $PM_{10}$  vykazovali významne silnejšie antikorelácie počas celého roka.

**Tabuľka 16 Korelačné faktory medzi strednými dennými vlnami OAR, EOAR, PM2,5 a PM10, teploty (T),vlhkosti (RH) a rýchlosti vetra (W) vypočítané pre celý rok, jar, leto, jeseň, a zimu.**



### 5.3. Výpočet rezidenčného času aerosólov

Z údajov o objemovej aktivite  $^{222}\text{Rn}$  boli urobené týždňové stredné hodnoty prislúchajúce času odberu filtrov, na ktorých sa merala objemová aktivita  $^{210}\text{Pb}$ . Priemerné mesačné hodnoty nameraných údajov za obdobie od novembra 2019 do októbra 2022 sú znázornené na Obrázku 49.



Obrázok 49 Stredné mesačné hodnoty objemovej aktivity  $^{210}\text{Pb}$  a  $^{222}\text{Rn}$  za obdobie rokov 2019-2022.

Namerané objemové aktivity  $^{222}\text{Rn}$  sú v rozmedzí od  $5,42 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  v jarných mesiacoch do  $9,84 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  v chladnejších mesiacoch. Hodnoty  $^{210}\text{Pb}$  sa pohybovali v rozmedzí ( $0,50 - 1,17$ )  $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Konštatujeme, že atmosférické koncentrácie  $^{222}\text{Rn}$  a  $^{210}\text{Pb}$  sú v dobrej zhode ( $R^2 = 0,45$ ).

Tabuľka 17 Stredné mesačné hodnoty objemových aktivít  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  a rovnovážneho faktora  $F$ .

Mesiac	$C_{214\text{Pb}}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	$C_{214\text{Bi}}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	$C_{\text{Rn}}$ [ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	$F$	$C_{210\text{Pb}}$ [ $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ ]
Január	3,81±0,69	3,12±0,54	7,65±1,78	0,49	0,86±0,02
Február	2,32±0,5	1,96±0,38	5,72±1,59	0,4	0,50±0,01
Marec	2,24±0,52	2,04±0,40	5,42±1,41	0,43	0,70±0,02
Apríl	2,05±0,49	1,88±0,38	5,78±1,65	0,43	0,61±0,02
Máj	2,16±0,52	2,41±0,40	5,75±1,59	0,41	0,56±0,01
Jún	2,55±0,55	2,32±0,43	6,02±1,53	0,47	0,66±0,02
Júl	2,62±0,57	2,43±0,44	6,86±1,66	0,43	0,68±0,02
August	2,99±0,61	2,67±0,48	7,71±1,71	0,42	0,86±0,02
September	3,38±0,66	2,97±0,51	7,26±1,70	0,5	1,13±0,03
Október	4,05±0,73	3,39±0,58	7,68±1,74	0,51	1,17±0,03
November	5,37±0,76	4,34±0,60	9,84±1,68	0,53	1,02±0,02
December	5,02±0,81	3,80±0,64	9,64±1,69	0,5	0,86±0,02
<b>Celé obdobie</b>	<b>3,16±0,61</b>	<b>2,75±0,48</b>	<b>6,98±1,64</b>	<b>0,46</b>	<b>0,80±0,02</b>

Priebeh týždňových stredných hodnôt objemovej aktivity produktov premeny radónu počas sledovaného obdobia bol podrobne opísaný v kapitole 4. Konštatovali sme, že priebeh  $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$ , respektíve EOAR je v dobrej zhode s priebehom hodnôt  $^{222}\text{Rn}$ . Pomer  $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$  bol počas roka najvyšší v jarných a jesenných mesiacoch. Rozpadová konštanta  $^{210}\text{Pb}$ , ktorého  $t_{1/2} = 22,3$  r bude  $\lambda_{\text{R}} = 2,61 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ . Keď zoberieme do úvahy stredný rovnovážny faktor ( $F = 0,46$ ), strednú objemovú aktivitu  $^{222}\text{Rn}$  ( $6,98 \pm 1,64$ )  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  a strednú objemovú aktivitu  $^{210}\text{Pb}$  ( $0,80 \pm 0,02$ )  $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ , stredná hodnota pomeru  $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$  bude  $1,15 \cdot 10^{-4}$ . Dosadením do vzorca (26) dostaneme rezidenčný čas  $\tau_{\text{R}} = 3,0$  dňa, čo je v dobrom súlade s rezidenčným časom  $\tau_{\text{R}} = 4,1$  dňa vypočítaným za obdobie rokov 2004-2013 v práci Sýkoru a kol. [2017].

Ako ďalšie boli vypočítané rezidenčné časy z pomeru  $^{210}\text{Pb}$  a produktov premeny radónu  $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$ .  $^{218}\text{Po}$  pre tento účel vzhľadom na svoju krátku dobu pol premeny ( $t_{1/2} = 3,1$  min) nie je vhodný. Maximálne hodnoty pomeru  $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb} = 3,46 \cdot 10^{-4}$  (september) a  $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Bi} = 3,93 \cdot 10^{-4}$  (september) boli vypočítané pre jesenné

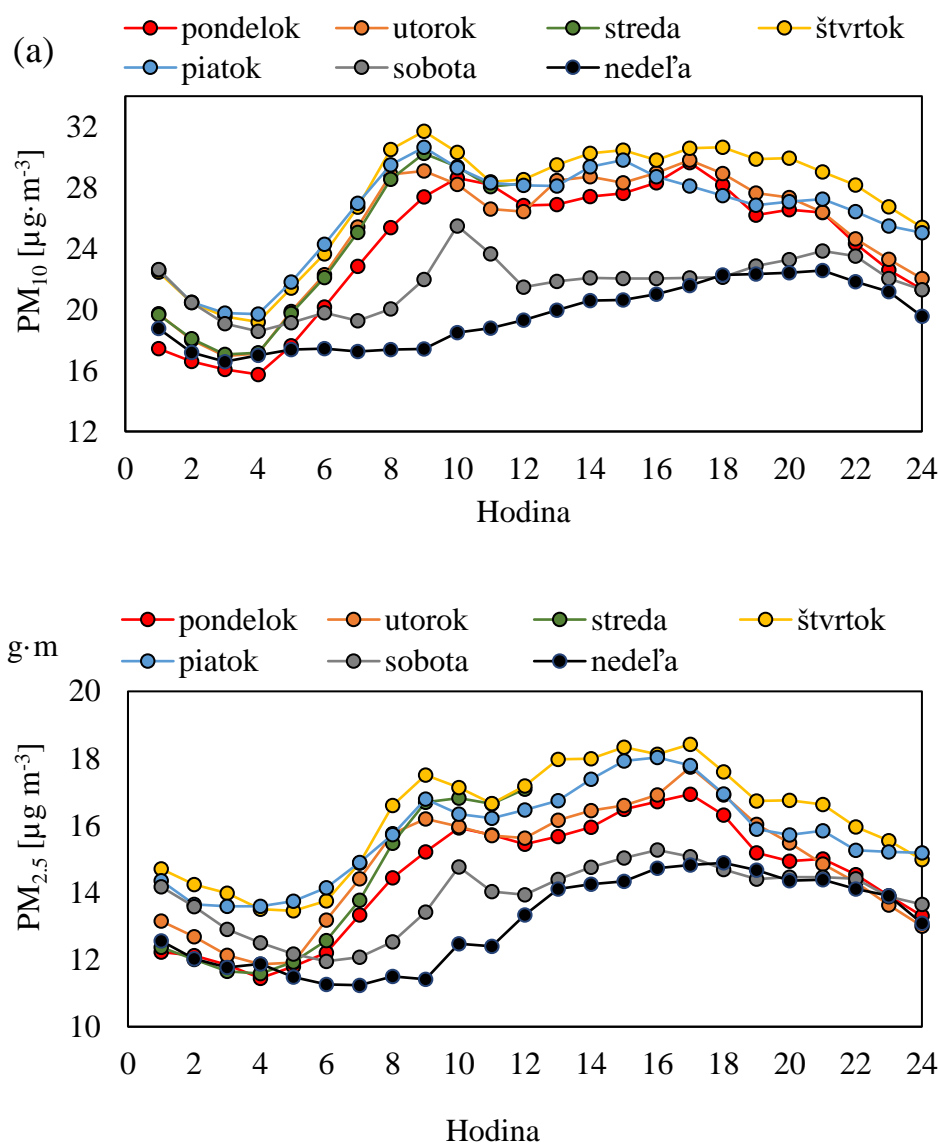
mesiace s hodnotami v dobrej zhode s priebehom  $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$ . Výsledné rezidenčné časy boli vypočítané podľa vzorca (26). Pre pomer  $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$  bol vypočítaný rezidenčný čas  $T_R = 3,17$  dňa; pre  $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$  bol  $T_R = 3,5$  dňa. 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 sú o čosi nižšie, no aj tak blízke hodnote akú nameral 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., 1998 a to v lokalite vzdialenej od Bratislavy len ~400 km a pomocou vzťahu (18) vypočítal  $\tau_R = 4,5$  dňa.

**Tabuľka 18** 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	$^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$	$\tau$ [d]	$^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$	$\tau$ [d]	$^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$	$\tau$ [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
<b>Celé obdobie</b>	<b><math>2,69 \cdot 10^{-4}</math></b>	<b>3,17</b>	<b><math>3,02 \cdot 10^{-4}</math></b>	<b>3,5</b>	<b><math>1,15 \cdot 10^{-4}</math></b>	<b>3,05</b>

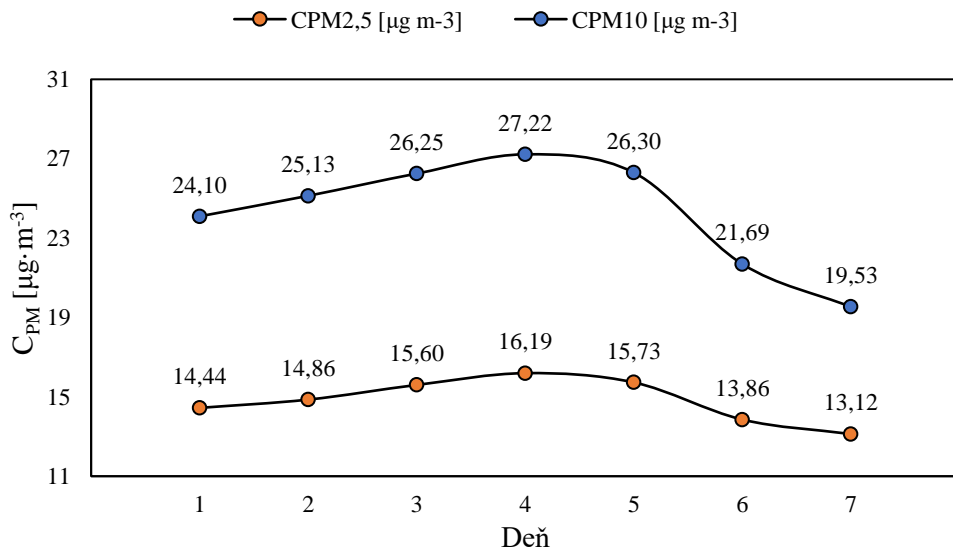
### 5.3.1. Využitie rezidenčného času aerosólov pre odhad denného príspevku antropogénneho PM v Bratislave

S cieľom overiť dobu zotrvania aerosólov v atmosfére boli z údajov o koncentrácii prachových častíc PM na meracej stanici Trnavské mýto zozbieraných počas rokov 2020-2022 určené stredné denné vlny pre jednotlivé dni týždňa (Obrázok 50). 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.



Obrázok 50 Stredné denné priebehy koncentrácie (a)  $PM_{10}$ , (b)  $PM_{2.5}$  pre jednotlivé dni týždňa na meracej stanici Trnavské mýto. Využitie boli hodinové údaje o PM z rokov 2020-2022.

Priemerná denná koncentrácia prachových častíc (Obr. 51) narastá od minima v pondelok do maxima vo štvrtok, v piatok nastáva mierny pokles, a cez víkend je tento pokles veľmi výrazný. Pre  $PM_{10}$  je pokles stredných hodnôt z piatka na sobotu na úrovni ~14%, pre  $PM_{2,5}$  ~8%. 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 51 Priemerná koncentrácia  $PM_{2,5}$  a  $PM_{10}$  pre jednotlivé dni týždňa na meracej stanici Trnavské mýto.

Vychádzame z predpokladu, že počas pracovných dní je intenzívna cestná premávka, a aj iné činnosti človeka vedúce k uvoľňovaniu PM častíc do atmosféry sú častejšie ako cez víkend. Na prachových časticách antropogénneho pôvodu sa podieľa vo veľkej miere doprava, ktorá v sebe zahŕňa eróziu ciest, opotrebenie pneumatík a brzdových obložení, ako aj resuspenziu pôdneho materiálu v dôsledku vzdušných turbulencií spôsobených dopravou. Podľa Bukowieckeho a kol. [2010] sa v mestách opotrebovanie brzd podieľa na 21 % dopravných emisií  $PM_{10}$ , resuspenzia cestného prachu predstavuje odhadom 38 % emisií a 41% emisií je možné pripísať výfukovým splodinám. Vecchi a kol. [2007] mali možnosť pozrieť sa na vplyv premávky v Miláne počas tzv. „Green Sunday“, kedy po dlhodobom prevýšení koncentrácie  $PM_{10}$  bola počas jednej nedele obmedzená premávka pre osobné automobily v celom meste od ôsmej hodiny ránej do ôsmej hodiny večer. Merania ukázali, že sa denná koncentrácia  $PM_{10}$  počas tejto nedele znížila o približne 13 % v porovnaní

s koncentráciou zaznamenanou predchádzajúcu noc. V porovnaní s predošlou nocou sa znížili aj koncentrácie plyných znečisťujúcich látok NO<sub>2</sub> a CO o približne 35%. Počas nedeľnej noci, kedy sa dopravné obmedzenia skončili, došlo k obrovskému nárastu PM<sub>10</sub> (+147%), ako aj koncentrácií plyných znečisťujúcich látok (+160 % pre NO<sub>2</sub> a +189 % pre CO).

Podľa štúdie kvality ovzdušia vykonanej Slovenským hydrometeorologickým ústavom [SHMÚ, 2020] z meraní na Trnavskom mýte tvoria atmosférický aerosól ~ 40 % lokálne zdroje a ~ 60 % je regionálne pozadie. Regionálne pozadie je tvorené zdrojmi nachádzajúcimi sa mimo územia mesta a často aj územia štátu. Tieto zdroje sú kombináciou prírodných a antropogénnych príspevkov prenášaných horizontálnym transportom na miesto merania, a teda nemôžu byť počas týždňa konštantné. My budeme pre náš model uvažovať iba hodnotu prírodnej zložky prachových častíc, ktorá už s horizontálnym transportom počíta.

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:

$$\frac{dC}{dt} = -\lambda_R \cdot C, \quad (41.)$$

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

Jej riešením je

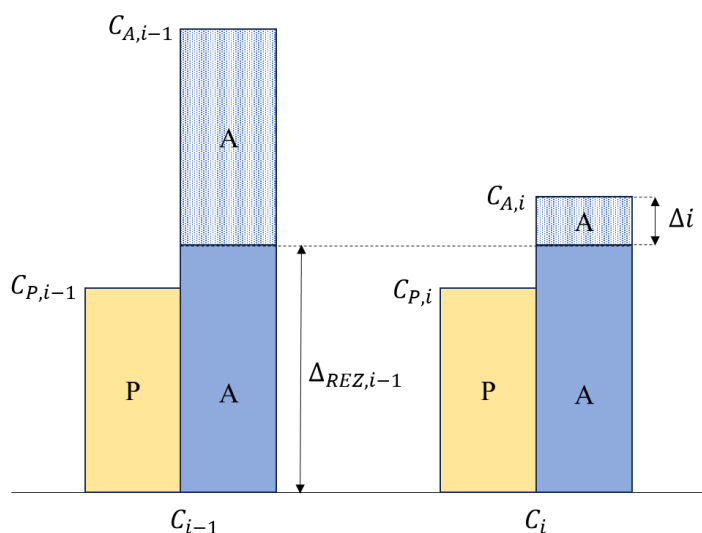
$$C(t) = C_0 \cdot e^{-\lambda_R t}, \quad (42.)$$

kde  $C_0$  = počiatočná koncentrácia aerosólov v atmosfére



Táto rovnica hovorí, že pokiaľ nenastane žiaden ďalší prísun aerosólov do atmosféry, ich koncentrácia bude s časom exponenciálne klesať.

Na nasledovnom obrázku 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 52. 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  $\Delta_i$  a reziduálnej antropogénnej zložky z predchádzajúceho dňa  $\Delta_{REZ,i-1}$ :

$$C_{Ai} = \Delta_i + \Delta_{REZ,i-1} \quad (43.)$$

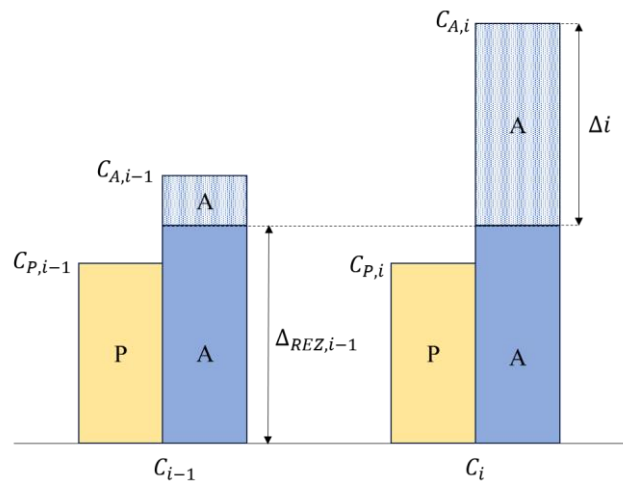
Reziduálna zložka sa dá podľa rovnice (42) vyjadriť ako

$$\Delta_{REZ,i-1} = C_{Ai-1} \cdot e^{-\lambda_R t} \quad (44.)$$

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

$$\Delta_i = C_{Ai} - C_{Ai-1} e^{-\lambda_R t} \quad (45.)$$

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 Obr. 53.



Obrázok 53. 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.

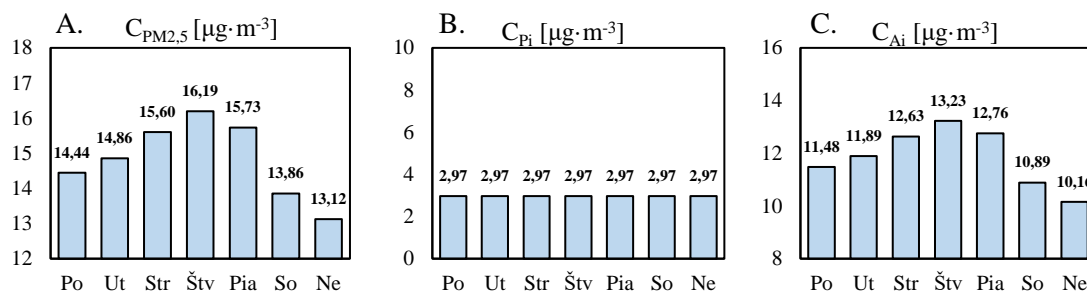
Na to, aby bolo možné tento model reálne použiť je potrebné ešte vedieť, v akom pomere sú atmosférické koncentrácie prachových častíc antropogénneho a prírodného pôvodu. Belis a kol. [2013] spracovali vo svojej publikácii údaje z 272 meracích miest v 98 európskych mestách z obdobia rokov 2000 - 2012. Z dostupných dát vypočítali príspevok k celkovej koncentrácii PM zo 6 kategórií. Patria sem: morská/cestná soľ, prach zo zemskej kôry, sekundárny anorganický aerosól, doprava, iné zdroje typické v danom bode a spaľovanie biomasy. Príspevok prírodnej zložky sa pripisuje resuspenzii pôdotvorných častíc šírených vetrom. Podľa Belisovej metaanalýzy je podiel antropogénnej zložky prachových častíc PM<sub>2,5</sub> pre západnú Európu na úrovni 70 - 90%. O vyčíslenie podielu antropogénnej zložky jemných prachových častíc sa usilovali aj iní autori. Karagulian [2015] urobil analýzu údajov z 51 krajín po celom svete. Priemerné hodnoty globálneho príspevku antropogénnej

zložky prachových častíc PM<sub>2,5</sub>, boli 82 %. Negral [2008] z meraní na západnom pobreží stredozemného mora odhadol tento príspevok na približne 70 %. Artinano [2003] preskúmal zloženie prachových častíc PM<sub>2,5</sub> a PM<sub>10</sub> počas zimných mesiacov v Madride a hovorí o príspevku antropogénnej zložky prachových častíc PM ~ 80 %. Na základe uvedenej literatúry sme sa pre účely využitia nášho modelu rozhodli uvažovať podiel antropogénnej a prírodnej zložky PM v pomere 80 : 20. Nakoľko náš model využíva údaje o denných koncentráciách PM určených z 3-ročných meraní PM, dennú hodnotu prírodného príspevku PM je možné považovať za konštantnú (v prípade takéhoto dlhého obdobia totiž platí, že napríklad priemerný prírodný príspevok PM v piatok bude rovnaký ako v sobotu).

Pri riešení problematiky tohto experimentu je prirodzenou otázkou, či budú reprezentatívnejšie výsledky poskytovať údaje o koncentrácii PM<sub>2,5</sub> alebo PM<sub>10</sub>. Odpoveď môžeme nájsť, keď sa zamyslíme na tým, ako bol vypočítaný rezidenčný čas. Ten bol určený z pomeru <sup>210</sup>Pb a produktov premeny radónu, <sup>214</sup>Pb a <sup>214</sup>Bi, ktoré v atmosfére podliehajú rovnakému osudu ako atmosférický aerosól. Atmosférický aerosól je zmesou organických a anorganických látok kvapalného a pevného skupenstva, rôznej veľkosti, zloženia a pôvodu. Veľkosť častíc tvoriacich aerosól bude mať veľký vplyv na ich dobu zotrvania v atmosfére. Jemný aerosól s hodnotou aerodynamického priemeru < 2,5 μm sa správa takmer ako plyn a zotrvá v atmosfére dni až týždne. Častice hrubej zložky aerosólov (> 2,5 μm) zostávajú v atmosfére hodiny až dni [BARMPADIMOS, 2011]. Martell & Moore [1974] píše, že 90% aktivity <sup>210</sup>Pb a <sup>210</sup>Bi je obsiahnutej v aerosólovej frakcii s veľkosťou 0,3 μm. Papastefanou [2009] určil veľkosti aerosólov, na ktorých sa zachytávajú produkty premeny radónu v rozsahu 0,10 - 0,37 μm pre <sup>214</sup>Pb. Produkty premeny radónu budú teda prítomné hlavne v aerosóloch tvorených časticami s menšími rozmermi. V literatúre sa tiež uvádza, že hodnoty rezidenčného času vypočítané z malých častíc aerosólu dávajú konzistentnejšie výsledky [BASKARAN, 2011, MARLEY a kol., 2000; CROVA, 2021]. Konštatujeme tak, že dosadením hodnôt PM<sub>2,5</sub> do nášho modelu pre odhad koncentrácie antropogénnych prachových častíc v atmosfére dostaneme reprezentatívnejšie výsledky.

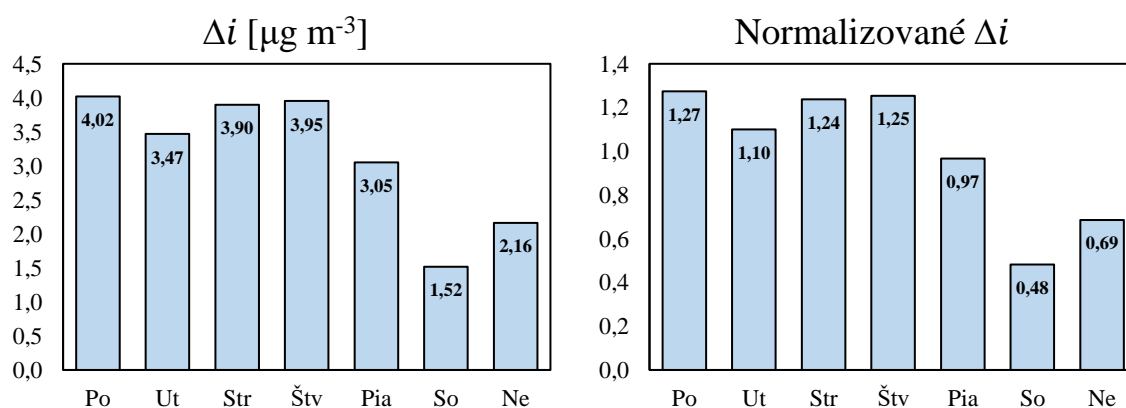
V tejto práci sme pomocou nášho modelu odhadli denný prírastok celkovej antropogénnej zložky prachových častíc PM<sub>2,5</sub> na Trnavskom mýte, ktoré sa nachádza v centre mesta a patrí k najrušnejším lokalitám v Bratislave. Na Obrázku 54 vidíme

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  $C_{Ai} = 11,86 \text{ } [\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$  a prírodnej zložky  $C_{Pi} = 2,97 \text{ } [\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$  (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 54** 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 (45) určený denný prírastok antropogénnej zložky  $PM_{2.5}$ . Jeho priebeh je ukázaný na obrázku (55), 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 55** 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 vypočítať výrazný týždenný cyklus denného prírastku antropogénnej zložky  $\Delta_i$ . 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  $\Delta_i$  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. Výsledky analýzy antropogénnej zložky koncentrácie  $PM_{2,5}$  na stanici Trnavské mýto sú zhrnuté aj v Tabuľke 19.

**Tabuľka 19** Dosiahnuté výsledky analýzy antropogénnej zložky koncentrácie  $PM_{2,5}$  na Trnavskom mýte.

Deň v týždni	Stredná denná hodnota $C_{PM_{2,5}}$ [ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	Antropogénna zložka PM $C_{A_i}$ [ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ]	Denný antropogénny príspevok k PM $\Delta_i$ [ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ]
Pondelok	14,44	11,48	4,02
Utorok	14,86	11,89	3,47
Streda	15,60	12,63	3,90
Štvrtok	16,19	13,23	3,95
Piatok	15,73	12,76	3,05
Sobota	13,86	10,89	1,52
Nedeľa	13,12	10,16	2,16
<b>Celkovo</b>	<b>14,83</b>	<b>11,86</b>	<b>3,15</b>

Výskyt týždennej variácie emisií koncentrácie PM v mestskom prostredí bol potvrdený aj v práci Barmpadimos a kol. [2011]. Autori spracovali údaje o koncentrácii PM vo veľkostiach 2,5 – 10  $\mu\text{m}$  namerané v mestách Bern a Chamont. Bern je mesto vyznačujúce sa hustou premávkou, zatiaľ čo Chamont je menšie mesto s 22 000 obyvateľmi. Najvyššie hodnoty koncentrácie PM pozorovali počas týždňa, najnižšie v sobotu a nedeľu. Priebeh normalizovaného denného príspevku koncentrácie PM z antropogénneho zdroja zistený týmito autormi je vo veľmi dobrej zhode s naším napriek tomu, že Barmpadimos a kol. vychádzali z odlišnej metodiky. Takáto týždenná variácia sa ukazuje ako typická pre atmosféru väčších miest. Autori tiež uvádzajú, že merania mimo mestskej časti vykazovali len veľmi malú variabilitu.

Náš model pre určovanie denného príspevku antropogénnych PM je v princípe možné využiť aj na väčšie prachové častice  $PM_{10}$ , pre tieto účely by ale bolo potrebné poznať ich rezidenčný čas v atmosfére. V tejto práci sme z pomeru  $^{210}Pb$  a produktov premeny radónu vypočítali rezidenčný čas zložky prachových častíc  $< 2,5 \mu m$ . Rezidenčný čas zložky prachových častíc  $< 10 \mu m$  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  $PM_{2,5}$ .

## 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 (oddiel 5.2.1.). Súčasný stav je taký, že na kontinuálne monitorovanie  $^{222}Rn$  vo vonkajšej atmosfére sa používa veľkoobjemová scintilačná komora s objemom  $4,5 \ell$  (LSCH) umiestnená v laboratóriu na KJFB FMFI UK, a pre simultánnu kontrolu objemových aktivít sa využíva scintilačná komora s objemom  $1 \ell$  (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. Pre bližšie porovnanie dát z dvoch detektorov boli v oddiele 5.2.1. analyzované vymývacie konštanty  $\lambda_R$ , ktoré charakterizujú zriedňovacie pomery v atmosfére. Konštatujeme dobrú zhodu priebehu stredných mesačných hodnôt konštanty  $\lambda_R$ ,  $R^2 = 0,77$ . Taktiež bola vypočítaná ekvivalentná

zmiešavacia výška charakterizujúca zmiešavacie pomery v atmosfére za nočných stabilných podmienok. Z dosiahnutých výsledkov vyplýva, že v areáli meteorologických pozorovaní je v porovnaní s FMFI UK zmiešavacia výška v priemere o 21 % vyššia, čo je pravdepodobne dôsledkom toho, že odberové miesto pred FMFI UK je čiastočne tienené blízkymi stromami.

Postavený spektrometrický monitor rozpadových produktov  $^{222}\text{Rn}$  využíva pre detekciu produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  zachytených na filtri kremíkový detektor. Tento monitor pracoval paralelne s monitorom  $^{222}\text{Rn}$  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  $^{218}\text{Po}$   $2,82 \pm 0,43$  [ $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ ],  $^{214}\text{Pb}$   $3,28 \pm 0,61$  [ $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ ] a  $^{214}\text{Bi}$   $2,78 \pm 0,47$  [ $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ ]. 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  $F = 0,37$ , 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. Pozorovali sme denné a sezónne variácie OAR, EOAR a  $F$ .

Produkty premeny radónu sú jednou z mnohých zložiek, ktorou je tvorený atmosférický aerosól. V práci boli analyzované a porovnané kontinuálne merania koncentrácie prachových častíc ( $\text{PM}_{10}$ ,  $\text{PM}_{2,5}$ ), namerané na meracích staniách 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 v kapitole 5.3. z nameraných experimentálnych údajov urobené týždňové stredné hodnoty objemových aktivít  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcich produktov premeny tak, aby zodpovedali času odberu na filter, na ktorom sa merala objemová aktivita  $^{210}\text{Pb}$ . Priebehy objemových aktivít  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcich produktov premeny boli v dobrej zhode s priebehmi koncentrácie  $^{210}\text{Pb}$ . Z pomeru  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  a produktov premeny radónu  $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$  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  $^{210}\text{Pb}$  a produktov premeny radónu je obsiahnutá v jemnej aerosólovej frakcii so stredným aerodynamickým priemerom do  $1 \mu\text{m}$ . Z tohto dôvodu je rezidenčný čas vypočítaný



v tejto práci na základe produktov premeny radónu reprezentatívnejší pre prachové častice PM<sub>2,5</sub> než pre PM<sub>10</sub>.

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 PM<sub>2,5</sub> je v dobrej zhode s nezávislým odhadom publikovaným v literatúre.

Koncentrácia prachových častíc PM<sub>2,5</sub> 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 PM<sub>2,5</sub> 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.

## Použitá literatura

AGARWAL, T., et al. (2012). Assessment of indoor radon, thoron concentration, and their relationship with seasonal variation and geology of Pratapgarh district, India. *Environmental Earth Sciences*, 66(4), 1095-1105.

ALPHA GUARD. Alpha GUARD Portable Radon Monitor. Saphymo GmbH, Heerstraße 149, D-0488 Frankfurt/Main – Germany, 2012.

AMRANE, M., OUFNI, L., & MISDAQ, M. A. (2014). Attached and unattached fractions of short-lived radon decay products in outdoor environments: effect on the human respiratory system. *Radiat Prot Dosimetry*, 162(3), 400-409. <https://doi.org/10.1093/rpd/nct338>

ANIS, K., IONESCU, A., & CANDAU, Y. (2009). Pollution source identification using a coupled diffusion model with a genetic algorithm. *Mathematics and Computers in Simulation*, 79(12), 3500-3510. <https://doi.org/10.1016/j.matcom.2009.04.020>

ANNEX, E. Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces. UNSCEAR 2006 Report, 2009, 197-334.

ARTIÑANO, B., et al. (2003). Anthropogenic and natural influence on the PM10 and PM2.5 aerosol in Madrid (Spain). Analysis of high concentration episodes. *Environmental Pollution*, 125(3), 453-465.

BARIK, R., et al. (2015). Assessment of radon concentration and its inhalation dose in dwellings of Jodhpur city, India. *Radiation Protection Dosimetry*, 167(4), 507-511. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncv310>

BARMPADIMOS, I., et al. (2011). The weekly cycle of ambient concentrations and traffic emissions of coarse (PM10–PM2.5) atmospheric particles. *Atmospheric Environment*, 45(27), 4580-4590.

BASKARAN, M. (2016). Radon: A tracer for Geological, Geophysical and Geochemical Studies.

- BASKARAN, M., & SHAW, G. E. (2001). Residence time of arctic haze aerosols using the concentrations and activity ratios of  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$ . *Journal of Aerosol Science*, 32, 443–452.
- BEGUM, N., et al. (2017). Radon concentration measurements in dwellings of District Haripur, Pakistan using CR-39 detectors. *Radiation Physics and Chemistry*, 137, 83-87.
- BELÁŇ, T., et al. Investigation of radionuclide variations in the Bratislava air. In: *Rare nuclear processes*. World Scientific Singapore, 1992. p. 345-366.
- BELIS, C. A., et al. (2013). Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe. *Atmospheric Environment*, 69, 94-108.
- BOONKAEW, K., et al. (2016). Indoor radon concentration distribution in selected areas of Thailand using CR-39 detectors. *Radiation Physics and Chemistry*, 127, 54-58.
- BOUBEL, Richard W., et al. *Fundamentals of air pollution*. Elsevier, 2013.
- BRADLEY, E. F. (2011). Relationship between  $\text{PM}_{2.5}$  and surface visibility in the southeastern United States. *Atmospheric Environment*, 45(20), 3451-3460.
- BRIGGS, Gary A. *Diffusion estimation for small emissions*. Atmospheric turbulence and diffusion laboratory, 1973, 965: 83-145.
- BUBBLE, D. (2000). Bubble chamber experiment [Video file]. Retrieved from <https://www.youtube.com/watch?v=abcdefg>
- BUKOWIECKI, N., et al.  $\text{PM}_{10}$  emission factors for non-exhaust particles generated by road traffic in an urban street canyon and along a freeway in Switzerland. *Atmospheric Environment*, 2010, 44.19: 2330-2340.
- BULKO, Martin; HOLÝ, Karol; MÜLLEROVÁ, Monika. On the relation between outdoor  $^{222}\text{Rn}$  and atmospheric stability determined by a modified Turner method. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, 189: 79-92.

- BURROWS, J. P., et al. (2014). Tropospheric chemistry and aerosols: Recent advances and challenges for the community. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 71(1), 1-28. <https://doi.org/10.1007/s10874-014-9286-1>
- CAMBRAIA, L. T., et al. (2013). Variations in the concentration of indoor radon as a function of temperature, pressure, and atmospheric precipitation in Araxá, Brazil. *Radiation Measurements*, 50, 46-49.
- CAMELO, S., et al. (2016). Assessment of indoor radon concentration in dwellings of Hermosillo, Sonora, Mexico. *Radiation Protection Dosimetry*, 169(1-4), 138-141. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncw146>
- CAMPBELL, L. (2015). Role of atmospheric aerosols in the atmospheric radiation budget. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(9), 4103-4124.
- CAÑETE, S., et al. (2014). In vivo genotoxicity assessment of indoor radon concentrations using the micronucleus test. *Radiation Protection Dosimetry*, 162(1-2), 45-49. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncu084>
- CASTAÑEDA-MIRANDA, A., et al. (2017). Indoor radon measurements using CR-39 detectors in some dwellings of Morelia, Michoacán, Mexico. *Radiation Measurements*, 98, 20-23.
- CICCIOLI, P., et al. (2014). Carbon dioxide emissions and related soil respiration measurements in a Mediterranean shrubland in central Italy. *Atmospheric Environment*, 99, 146-156.
- CLARKE, Antony D.; AHLQUIST, Norman C.; COVERT, David S. The Pacific marine aerosol: Evidence for natural acid sulfates. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1987, 92.D4: 4179-4190.
- COLBECK, I., & LAZARIDIS, M. LAI, Ka man; NASIR, Zaheer Ahmad; TAYLOR, Jonathon. *Bioaerosols and hospital infections. Aerosol Science: Technology and Applications*, 2013, 271-289.
- DAHL, S. O., et al. (2013). Historical records of atmospheric radon concentrations at Ny-Ålesund, Svalbard. *Journal of Environmental Radioactivity*, 126, 352-359.

- DAVIS, A. A., et al. (2016). The impacts of mobile sources on PM<sub>2.5</sub> concentrations in Santiago, Chile, as observed by a mobile air quality monitoring system. *Atmospheric Environment*, 145, 265-275.
- DESIDERI, Donatella, et al. Monitoring the atmospheric stability by using radon concentration measurements: a study in a Central Italy site. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 2006, 270.3: 523-530.
- DIABATE, S., et al. (2016). Seasonal variations and health risk assessment of indoor radon in dwellings of six cities in Burkina Faso, West Africa. *Environmental Earth Sciences*, 75(4), 1-8.
- DÍAZ, R. S., et al. (2012). Monitoring of radon concentrations in soil gas at different depths in Spain. *Radiation Measurements*, 47(12), 1057-1060.
- DINIZ, C. V. G., et al. (2014). Outdoor and indoor dose assessment of radon-222 in dwellings of Pocos de Caldas – Brazil. *Radiation Physics and Chemistry*, 103, 157-160.
- DOBSON, Ruaraidh, et al. Diurnal variability of fine-particulate pollution concentrations: data from 14 low-and middle-income countries. *The International Journal of Tuberculosis and Lung Disease*, 2021, 25.3: 206-214.
- DOI, Masahiro, et al. Vertical distribution of outdoor radon and thoron in Japan using a new discriminative dosimeter. *Health physics*, 1994, 67.4: 385-392.
- DORN F.E. (1900) Die von radioactiven Substanzen ausgesandte Emanation. *Emanation*". *Abhandlungen der Naturforschenden Gesellschaft zu Halle* 23:1–15
- DUENAS, C., et al. Radon concentrations in surface air and vertical atmospheric stability of the lower atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity*, 1996, 31.1: 87-102.
- DUENAS, C.; FERNANDEZ, M. C. Dependence of radon 222 flux on concentrations of soil gas and air gas and an analysis of the effects produced by several atmospheric variables. In: *Annales geophysicae. Series B. Terrestrial and planetary physics*. 1987. p. 533-539.

DUSEK, Ulrike, et al. Size matters more than chemistry for cloud-nucleating ability of aerosol particles. *Science*, 2006, 312.5778: 1375-1378.

EL-TAHER, A., & EL-TURKI, A. (2016). Radon Activity Measurements in irrigation water from Qassim Province Using RAD7. *Journal of Environmental Biology*, 37, 1299-1302.

EL-TAHER, A.; AL-TURKI, Ahmad. Radon activity measurements in irrigation water from Qassim Province by RAD7. *Journal of environmental biology*, 2016, 37.6: 1299.

FIORILLI, Giovanni, et al. Impact of active breaks in the classroom on mathematical performance and attention in elementary school children. In: *Healthcare*. MDPI, 2021. p. 1689.

FONTAN, J., et al. Une methode de mesure de la stabilite verticale de l'atmosphere pres du sol. *Boundary-Layer Meteorology*, 1979, 17: 3-14.

FRANCIS, C. W.; CHESTERS, G.; HASKIN, L. A. DETERMINATION OF  $^{210}\text{Pb}$  MEAN RESIDENCE TIME IN THE ATMOSPHERE. Univ. of Wisconsin, Madison, 1970.

GAO, Y., et al. (2014). Spatial variation of indoor radon concentration and its geogenic controlling factors in Baotou, China. *Journal of Environmental Radioactivity*, 138, 32-38.

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.

GEORGE, A. C.; KNUTSON, E. O.; TU, K. W. Radon daughter plateout-I measurements. *Health physics*, 1983, 45.2: 439-444.

GIFFORD, Franklin A. Use of routine meteorological observations for estimating atmospheric dispersion. *Nucl. Safety*, 1961, 2: 47-51.

GOBANTHAN, S., et al. (2013). Seasonal variation of indoor radon concentration in dwellings of Kanyakumari District, Tamil Nadu, India. *Journal of Environmental Radioactivity*, 115, 133-137.

GRIFFITHS, A. D., et al. Improved mixing height monitoring through a combination of lidar and radon measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2013, 6.2: 207-218.

GUIDE, Regulatory, et al. office of Standards Development. Washington, DC, 1979.

GUO, Q., et al. (2017). Assessment of the relationship between indoor radon concentration and soil permeability in southern Shaanxi Province, China. *Environmental Science and Pollution Research*, 24(15), 13719-13726.

HANNA, Steven R.; BRIGGS, Gary A.; HOSKER JR, Rayford P. Handbook on atmospheric diffusion. National Oceanic and Atmospheric Administration, Oak Ridge, TN (USA). Atmospheric Turbulence and Diffusion Lab., 1982.

HARRISON, Roy M., et al. Studies of the coarse particle (2.5–10  $\mu\text{m}$ ) component in UK urban atmospheres. *Atmospheric Environment*, 2001, 35.21: 3667-3679.

HATTORI T, ICHIJI T, ISHIDA K (1995) Equilibrium factor and unattached fraction of radon progeny in outdoor air. *Radioisotopes* 44:710–714

HEMOND, Harold F.; FECHNER, Elizabeth J. Chemical fate and transport in the environment. academic press, 2022.

HICKS, B. B., HUNTER, C. H., & WEBER, A. H. (2016). On dispersion above a forest—Measurements and methods. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 66(8), 768-785. <https://doi.org/10.1080/10962247.2016.1178189>

HICKS, B. B.; HUNTER, C. H.; WEBER, A. H. On dispersion above a forest—Measurements and methods. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2016, 66.8: 768-785.

HINDS, William C.; ZHU, Yifang. Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles. John Wiley & Sons, 2022.

HOLY, K., BÖHM, R., MATOS, M., POLASKOVA, A., HOLA, O., In: Proc. of the IRPA Reg. Symp. on Rad. Protection (ed. J. Sabol), Prague, Czech Rep. 1997, pp.117-120

HOLÝ, K., et al.: Stanovenie predprevádzkových objemových aktivít rádionuklidov v prízemnej vrstve atmosféry a vo vodách v lokalite výstavby Cyklotrónového centra slovenskej republiky. Výskumná správa KJF FMFI UK – 137/03, Bratislava, január 2003, 51 str.

HOLÝ, K., CHUDÝ, M., ŠIVO A. et al.:  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{14}\text{CO}_2$  concentrations in the surface layer of the atmosphere. In: *Isotope aided studies of atmospheric carbon dioxide and other greenhouse gases – Phase II*. Vienna: IAEA – TECDOC-1269, 2002. 148 p.

HOLY, Karol, et al. A two-filter detection system for continuous radon monitoring; Dvojfiltrový detekčný systém pre kontinuálne monitorovanie radonu. *Bezpečnosť Jaderné Energie*, 2012, 20.

HOU, Changsong, et al. Impact of haze-fog days to radon progeny equilibrium factor and discussion of related factors. *Radiation and environmental biophysics*, 2015, 54: 475-480.

HUANG, Y., et al. (2014). Characteristics of indoor radon concentrations in newly built houses: a survey in China. *Environmental Earth Sciences*, 72(2), 523-529.

CHAMBERS, S. D., et al. On the use of radon for quantifying the effects of atmospheric stability on urban emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15.3: 1175-1190.

CHANG, S. Y., et al. (2012). Application of a micro PIV system in the measurement of indoor airflow patterns. *Building and Environment*, 52, 122-133.

CHEN, Jing; HARLEY, Naomi H. A review of indoor and outdoor radon equilibrium factors—Part I:  $^{222}\text{Rn}$ . *Health physics*, 2018, 115.4: 490-499.

CHEN, Jing; HARLEY, Naomi H. A review of indoor and outdoor radon equilibrium factors—part II:  $^{220}\text{Rn}$ . *Health Physics*, 2018, 115.4: 500-506.

CHEN, X., et al. (2015). Outdoor radon concentration measurements and indoor radon concentration estimation in the South China Sea region. *Radiation Physics and Chemistry*, 116, 97-100.



- CHENG, C. M., et al. (2013). Application of mobile lidar in evaluation of PM10 emission reduction effectiveness in an industrial city. *Atmospheric Environment*, 64, 39-46.
- CHRISTODOULATOS, J., et al. (2016). Assessment of the concentration and sources of particulate matter in urban and suburban schools in Thessaloniki, Greece. *Environmental Science and Pollution Research*, 23(13), 12638-12649. <https://doi.org/10.1007/s11356-016-6402-2>
- ICRP, 2014. Radiological Protection against Radon Exposure. ICRP Publication 126. *Ann. ICRP* 43(3).
- JACOBI, W.; ANDRE, K. The vertical distribution of radon 222, radon 220 and their decay products in the atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 1963, 68.13: 3799-3814.
- JANIK, Mirosław; BOSSEW, Peter. Analysis of simultaneous time series of indoor, outdoor and soil air radon concentrations, meteorological and seismic data. *Nukleonika*, 2016, 61.3: 295-302.
- JASAITIS, Dainius; GIRGŽDYS, Aloyzas. The investigation of tobacco smoke influence on the changes of indoor radon and its short-lived decay products volumetric activities. *Journal of Environmental Engineering and Landscape Management*, 2013, 21.1: 59-66.
- KARAGULIAN, Federico, et al. Contributions to cities' ambient particulate matter (PM): A systematic review of local source contributions at global level. *Atmospheric environment*, 2015, 120: 475-483.
- KHALID, N. M., et al. (2015). Indoor radon concentration levels in dwellings of Klang Valley, Malaysia. *Environmental Earth Sciences*, 74(7), 6067-6074.
- KHAN, Fayaz, et al. Study of indoor radon concentrations and associated health risks in the five districts of Hazara division, Pakistan. *Journal of environmental monitoring*, 2012, 14.11: 3015-3023.
- KOJIMA, H. The equilibrium factor between radon and its daughters in the lower atmosphere. *Environment International*, 1996, 22: 187-192.

- KRISTIANSEN, Nina Iren, et al. Evaluation of observed and modelled aerosol lifetimes using radioactive tracers of opportunity and an ensemble of 19 global models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16.5: 3525-3561.
- KRITZ, Mark A.; ROSNER, Stefan W.; STOCKWELL, D. Zoe. Validation of an off-line three-dimensional chemical transport model using observed radon profiles: 1. Observations. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1998, 103.D7: 8425-8432.
- KÜMMEL, M., et al. Outdoor <sup>222</sup>Rn-concentrations in Germany—part 1—natural background. *Journal of environmental radioactivity*, 2014, 132: 123-130.
- LAMBERT, G., et al. Cycle du radon et de ses descendants: application à l'étude des échanges troposphère-stratosphère. 1982.
- LAMBERT, G.; SANAK, J.; POLIAN, G. Mean residence time of the submicrometer aerosols in the global troposphere. In: *Precipitation scavenging, dry deposition, and resuspension. Volume 2. Proceedings.* 1983.
- LAZARIDIS, Mihalis; LAZARIDIS, Mihalis. *First principles of meteorology.* Springer Netherlands, 2011.
- LEACH, V. A.; CHANDLER, W. P. Atmospheric dispersion of radon gas and its decay products under stable conditions in arid regions of Australia. *Environmental monitoring and assessment*, 1992, 20: 1-17.
- LINDMARK, A.; ROSEN, B. Radon in soil gas—Exhalation tests and in situ measurements. *Science of the total Environment*, 1985, 45: 397-404.
- LIU, Xin Ran. *Low background techniques for the SuperNEMO experiment.* 2017. PhD Thesis. UCL (University College London).
- LUCAS, 1957 H. *Lucas Health Physics*, 28 (1957), p. 68
- LUNA, R. E.; CHURCH, H. W. A comparison of turbulence intensity and stability ratio measurements to Pasquill stability classes. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 1972, 11.4: 663-669.

MAJIDI, M., et al. (2013). Assessment of radon concentration and annual effective dose in the air of Khorramabad, Iran. *Radiation Protection Dosimetry*, 153(1), 76-80.

MALAKHOV, S. G., et al. Diurnal variations of radon and thoron decay product concentrations in the surface layer of the atmosphere and their washout by precipitations. *Tellus*, 1966, 18.2-3: 643-654.

MALAKHOV, S. G., et al. Diurnal variations of radon and thoron decay product concentrations in the surface layer of the atmosphere and their washout by precipitations. *Tellus*, 1966, 18.2-3: 643-654.

MANICKAVASAGAM, M., et al. (2015). Indoor radon concentration measurements in schools and houses of Nilgiris district, Tamil Nadu, India. *Radiation Protection Dosimetry*, 167(1-3), 177-180.

MASEVHE et. al., *J Environ Anal Toxicol* 2017, 7:4; DOI: 10.4172/2161-0525.1000472

MCMURRY, P. H.; WILSON, J. C. Growth laws for the formation of secondary ambient aerosols: implications for chemical conversion mechanisms. *Atmospheric Environment* (1967), 1982, 16.1: 121-134.

Measurement of Radon and Radon Daughters in Air, Bethesda: NCRP Report No. 97, 1998, 174p.

MIKLYAEV, P. S., et al. High seasonal variations of the radon exhalation from soil surface in the fault zones (Baikal and North Caucasus regions). *Journal of Environmental Radioactivity*, 2020, 219: 106271.

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

MOORE, H. E.; POET, S. E.; MARTELL, E. A.  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ , and  $^{210}\text{Po}$  profiles and aerosol residence times versus altitude. *Journal of Geophysical Research*, 1973, 78.30: 7065-7075.

- MOORE, H.E., POET, S.E., MARTELL, E.A., 1973.  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  and  $^{210}\text{Po}$  profiles and aerosol residence times Versus altitudes. *J. Geophys. Res.* 78 (30), 7065–7075.
- MOORE, Howard E.; POET, Stewart E.; MARTELL, Edward A. Vertical profiles of radon-222 and its long-lived daughters over the eastern Pacific. *Environmental Science & Technology*, 1977, 11.13: 1207-1210.
- MORENO, V., BACH, J., FONT, LL, BAIXERAS, C., ZARROCA, M., LINARES, R., ROQUE, C., 2016. Soil radon dynamics in the Amer fault zone: an example of very high seasonal variations. *J. Environ. Radioact.* 151, 293–303.
- MORENO, V., et al. Characterization of blowholes as radon and thoron sources in the volcanic region of La Garrotxa, Spain. *Radiation measurements*, 2009, 44.9-10: 929-933.
- MÜLLEROVÁ, M. *Rádiometrické merania – praktikum* [pdf dokument]. 2006. 13 p.
- NAZAROFF, William W. Radon transport from soil to air. *Reviews of geophysics*, 1992, 30.2: 137-160.
- NEHER, H. V. Cosmic-ray particles that changed from 1954 to 1958 to 1965. *Journal of Geophysical Research*, 1967, 72.5: 1527-1539.
- OECD, 1979; Dostupné na: <http://www.oecd-nea.org/rp/reports/1979/exposure-to-radiation-1979.pdf>
- PANDIS, Spyros N.; SEINFELD, John H. *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*. Wiley, 2006.
- PAPASTEFANOU, C. Residence time of tropospheric aerosols in association with radioactive nuclides. *Applied Radiation and Isotopes*, 2006, 64.1: 93-100.
- PAPASTEFANOU, Constantin, et al. Radon decay product aerosols in ambient air. *Aerosol and Air Quality Research*, 2009, 9.4: 385-393.
- PASQUILL, Frank. The estimation of the dispersion of windborne material. *Meteoro. Mag.*, 1961, 90: 20-49.

PASQUILL, Frank; SMITH, Frank Barry. Atmospheric diffusion. Chichester: Ellis Horwood, 1983.

PERRINO, Cinzia; PIETRODANGELO, Adriana; FEBO, Antonio. An atmospheric stability index based on radon progeny measurements for the evaluation of primary urban pollution. *Atmospheric Environment*, 2001, 35.31: 5235-5244.

POLSTER, G., 1967. [On the application of Turner's classification diffusion categories in the Central European climatic region. Central Radiological Protection Division of the Research Centre Jülich. Internal Report No. 94]

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.

PORSTENDORFER, J.; MERCER, T. T. Influence of electric charge and humidity upon the diffusion coefficient of radon decay products. *Health Physics*, 1979, 37.2: 191- 199.

PUTMAN, J. L. An expression for source counting rate required in tracer experiments. *Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes*, 1962, 13.

QUEROL, Xavier, et al. Spatial and temporal variations in airborne particulate matter (PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>) across Spain 1999–2005. *Atmospheric Environment*, 2008, 42.17: 3964-3979.

SAHOTA, H. S., et al. Temperature variation of indoor and outdoor radon progeny. *Atmospheric Environment*, 2005, 39.16: 2991-2994.

SALZANO, Roberto, et al. Quantitative interpretation of air radon progeny fluctuations in terms of stability conditions in the atmospheric boundary layer. *Boundary-layer meteorology*, 2016, 160: 529-550.

SESANA L, BARBIERI L, FACCHINI U, MARCAZZAN G (1998) <sup>222</sup>Rn as a tracer of atmospheric motions: a study in Milan. *Radiat Prot Dosim* 78:65–71

SESANA, L.; CAPRIOLI, E.; MARCAZZAN, G. M. Long period study of outdoor radon concentration in Milan and correlation between its temporal variations and

dispersion properties of atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2003, 65.2: 147-160.

SEVCIK, P. Development and testing of the detector for monitoring radon double-filter method; Vyvoj a testovanie detektora pre monitorovanie radonu dvoj-filtrovou metódou. 2008.

SHAPIRO, Mark H.; FORBES-RESHA, Judith L. Mean residence time of <sup>7</sup>Be-bearing aerosols in the troposphere. *Journal of Geophysical Research*, 1976, 81.15: 2647-2649.

SHMÚ 2020\_Štúdia kvality ovzdušia v aglomerácii Bratislava, <https://www.shmu.sk/sk/?page=229>

SCHMALE, Julia, et al. Source identification and airborne chemical characterisation of aerosol pollution from long-range transport over Greenland during POLARCAT summer campaign 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11.19: 10097-10123.

STANYS, T. Meranie objemových aktivít produktov premeny radónu a torónu [diplomová práca]. 1997.

STANYS, T. Vývoj detekčného systému produktov premeny radónu a jeho aplikácie.[rigorózna práca]. 2002.

SUNDAL, Aud Venke, et al. The influence of meteorological parameters on soil radon levels in permeable glacial sediments. *Science of the total environment*, 2008, 389.2-3: 418-428.

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

ŠÁRO, Š. TOLGEYESSY, J. 1985. *Rádioaktivita prostredia*, Bratislava : Alfa, 303 p.

ŠIMON, J. 2007a. Urcovanie ekvivalentnej zmiešavacej výšky prostredníctvom objemovej aktivity <sup>222</sup>Rn vovonkajšej atmosfére: Rigorózna práca. Bratislava: FMFI UK, KJFB, 2007. 61 s.

TAIPALE, T. T.; WINQVIST, K. Seasonal variations in soil gas radon concentration. *Science of the total environment*, 1985, 45: 121-126.

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.

TURNER, D. Bruce. A diffusion model for an urban area. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 1964, 3.1: 83-91.

TURNER, D.B., 1967. Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates. Public Health Service Pub. 999 AP-26, Robert A. Taft Sanitary Engineering Center, Cincinnati, Ohio, pp. 84.

TURNER, D.B., 1997. The long lifetime of the dispersion methods of Pasquill in U.S. regulatory air modeling. *J. Appl. Meteorol.* 36, 1016–1020.

UNSCEAR, Sources. effects of Ionizing Radiation. United Nations, New York, 2000, 453-487.

VECCHI, R., et al. Radon-based estimates of equivalent mixing layer heights: A long-term assessment. *Atmospheric environment*, 2019, 197: 150-158.

VECCHI, R.; MARCAZZAN, G.; VALLI, G. Seasonal variation of <sup>210</sup>Pb activity concentration in outdoor air of Milan (Italy). *Journal of environmental radioactivity*, 2005, 82.2: 251-266.

VECCHI, Roberta, et al. 4-hours resolution data to study PM<sub>10</sub> in a “hot spot” area in Europe. *Environmental monitoring and assessment*, 2009, 154: 283-300.

VENKATRAM, Akula. An examination of the Pasquill-Gifford-Turner dispersion scheme. *Atmospheric Environment*, 1996, 30.8: 1283-1290.

VERMA, Deepak; KHAN, M. Shakir. Assesment of indoor radon, thoron and their progeny in dwellings of bareilly city of northern india using track etch detectors. *Rom. Journ. Phys*, 2014, 59.1-2: 172-182.

WECKWERTH, Gerd. Verification of traffic emitted aerosol components in the ambient air of Cologne (Germany). *Atmospheric environment*, 2001, 35.32: 5525-5536.

WICKE, Andreas; PORSTENDOERFER, Justin. Radon daughter equilibrium in dwellings. In: *Natural radiation environment*. 1982.

WINKLER, Paul M., et al. Heterogeneous nucleation experiments bridging the scale from molecular ion clusters to nanoparticles. *Science*, 2008, 319.5868: 1374-1377.

WINKLER, R., et al. Temporal variation of <sup>7</sup>Be and <sup>210</sup>Pb size distributions in ambient aerosol. *Atmospheric Environment*, 1998, 32.6: 983-991.

WINKLER, RANCE & RUCKERBAUER, F & TRAUTMANNSSHEIMER, 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.

WORLD HEALTH ORGANIZATION, et al. WHO global air quality guidelines: particulate matter (PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide. World Health Organization, 2021.

WORLD HEALTH ORGANIZATION. WHO handbook on indoor radon: a public health perspective. World Health Organization, 2009.

ZAHOROWSKI, W.; CHAMBERS, S. D.; HENDERSON-SELLERS, A. Ground based radon-222 observations and their application to atmospheric studies. *Journal of environmental radioactivity*, 2004, 76.1-2: 3-33.

ZHANG, Zhenyi, et al. Interpretation of ground-level ozone episodes with atmospheric stability index measurement. *Environmental Science and Pollution Research*, 2012, 19: 3421-3429.