

JIHOČESKÁ UNIVERZITA V ČESKÝCH BUDĚJOVICÍCH

Zdravotně sociální fakulta

Katedra radiobiologie a toxikologie

Plynné výpusti ¹⁴C z ETE

Diplomová práce

AUTOR PRÁCE:Bc. Daniel JanovskýVEDOUCÍ PRÁCE:Ing. Ivo Světlík

V Českých Budějovicích 18. května 2007

Prohlašuji, že svoji diplomovou práci jsem vypracoval samostatně pouze s použitím pramenů a literatury uvedených v seznamu citované literatury.

Prohlašuji, že v souladu s § 47b zákona č. 111/1998 Sb. v platném znění souhlasím se zveřejněním své diplomové práce, a to v nezkrácené podobě elektronickou cestou ve veřejně přístupné části databáze STAG provozované Jihočeskou univerzitou v Českých Budějovicích na jejích internetových stránkách.

V Českých Budějovicích 28.5. 2007

.....

Poděkování:

Děkuji vedoucímu diplomové práce Ing. Ivo Světlíkovi za cenné rady, připomínky a metodické vedení práce.

Abstract

Gasseous effluents of ¹⁴C from NPP Temelín

Within the presented thesis there were collected data of effluents of 14 C chemical forms from ventilation stacks of the Unit 1, the Unit 2 and the Auxiliary Building of the Temelin NPP for the period from 2001 to 2006. These data are compared to power of both reactors and concentration of ammonium ions in coolant of the primary circuit of the Unit 1 and Unit 2. According to the literature available especially these parameters affect the amount of 14 C released by nuclear power plants to environment.

Statistical distribution of daily released activities of ${}^{14}\text{CO}_2$ from the Unit 1 and the Auxiliary Building approach log-normal probability distribution with the exception of a presence of several outliers in the area of the lowest activities. Daily released activity of ${}^{14}\text{CO}_2$ from the Unit 2 meet the assumption of the log-normal probability distribution. Other surveyed distributions are bimodal or multimodal.

By comparison of the released activities of ¹⁴C from the Unit 1 and Unit 2 (without differentiation of forms) statistically significant differences were confirmed. Representation of the ¹⁴CO₂ form in effluents from both units is very low and usually it ranges in units of percent. On the contrary in Auxiliary Building effluents ¹⁴CO₂ is a dominant form. The power effect on forms of ¹⁴C effluents when operating the reactors of the Unit 1 and Unit 2 has not been statistically proved. Also affection of the speed of ¹⁴CO₂ releasing and its combustable forms by concentrations of ammonium ions in coolant of the primary circuit is not statistically provable for both reactors.

During outages of reactors it comes about statistically provable reduction of released activities of ${}^{14}CO_2$ and ${}^{14}C_xH_y$. Ranges of the ${}^{14}C$ activities during reactor outages can be represented by functions of a dependence of the released activities on time (quadratic polynomials) by 50 and 35 day at the Unit 1 and Unit 2, respectively.

Released activities of ¹⁴C for the period from 2001 to 2006 were converted to effective dose commitments for intake by an individual from the critical group of population using the conversion factors (activity to dose) and compared to the available data for

irradiation from ¹⁴C in the surrounding of French power plants with light water pressurized reactors.

Standardized annual released activities of ¹⁴C from the Temelín NPP after operation of both units range in the interval from 216 to 409 GBq $GW(e)^{-1}$ per year⁻¹. This interval approaches the values presented for foreign nuclear power plants with light water pressurized reactors.

Effluents of ${}^{14}\text{CO}_2$ and its combustible forms at both units are characterised by significant oscillations in a wide interval. The cause of these changes is not explainable only due to changes of power of reactors and concentration of ammonium ions in coolant of the primary circuit. To specify the cause/causes of such oscillations it would be probably necessary to clarify especially the size of flows of ${}^{14}\text{C}$ forms, their time variations, delay periods and possible causes of cumulation in individual technological parts of the Unit 1 and Unit 2.

Definice pojmů použitých v této práci

Toky ¹⁴ C	Hodnoty vypouštěné aktivity (resp. aktivit jednotlivých forem) ${}^{14}C$ přepočtené na stejný časový interval (denní výpust ${}^{14}C$).
Rychlost uvolňování ¹⁴ C	Výsledky bilančních stanovení ¹⁴ C převedené na spojité pozorování rozpočítáním podle intervalu délky odběru vzorku do časového rozpětí frekvence odběru vzorku (rozpočet na jednotlivé dny). Takto zavedená veličina umožňuje porovnání (korelaci) s ostatními sledovanými parametry.
Kumulativní rozdělení	Kumulativní relativní četnosti, odhad distribuční funkce.

Seznam použitých zkratek, symbolů a jednotek

Použité zkratky

ALARA	As Low As Reasonably Achievable – základní princip (imperativ) ochrany před ionizujícím zářením určující přípustné ozáření za různých okolností, které by vždy mělo být tak nízké, jak je za daných okolností rozumně možné dosáhnou
AZ	aktivní zóna
BAPP	budova aktivních pomocných provozů
BWR	Boiling Water Reactor – lehkovodní varný reaktor
ČEZ	České energetické závody
EBO	elektrárna Jaslovské Bohunice
EDU	elektrárna Dukovany
EGP	Energoprojekt Praha (dřívější), dnes firma Ústav jaderného výzkumu Řež a.s., divize Energoprojekt Praha
EMO	Jaderná elektrárna Mochovce
EPRI	Electric Power Research Institute – Výzkumný ústav elektroenergetiky, USA
ETE	elektrárna Temelín
HVB	hlavní výrobní blok
HWR	Heavy Water Reactor – těžkovodní reaktor
CHEMCOMEX	Chemcomex Praha, a.s., obchodní firma
CHEMIS	chemický informační systém
I.O.	primární okruh
IAEA	International Atomic Energy Agency – Mezinárodní úřad pro atomovou energii
JE	jaderná elektrárna
KP	kontrolované pásmo
LaP	limity a podmínky
LRKO	laboratoř radiační kontroly okolí
LWR	Light Water Reactor – lehkovodní reaktor
PpBZ	předprovozní bezpečnostní zpráva
PWR	Pressurized Water Reactor – tlakovodní reaktor

RAO	radioaktivní odpad
SÚJB	Státní úřad pro jadernou bezpečnost
SÚRO	Státní ústav radiační ochrany
SVO	speciální vodoočistka
UNSCEAR	The United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation – Vědecký výbor pro účinky atomového záření Spojených národů
VK	ventilační komín
VVER	Vodo-Vodjanoj Energetičeskij Reaktor – vodo-vodní energetický reaktor, ruské označení reaktoru PWR (Pressurized Water Reactor)
WHO	World Health Organization – Světová zdravotnická organizace
NBS	National Bureau of Standards – Americký národní ústav pro normalizaci a technologie, dnešní NIST (National Institute of Standards and Technology)
AV ČR	Akademie věd České republiky

Použité symboly a jednotky

barn	dočasně mezinárodně uznávaná jednotka plochy účinného průřezu $(1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2)$, jednotka vznikla v r. 1942 při práci na konstrukci atomové bomby – atomové jádro uranu se výzkumníkům zdálo "velké jako stodola" (barn = stodola)	
Bq	becquerel, (odvozená) jednotka radioaktivity v soustavě SI, má rozměr reciproké sekundy	
сса	z latiny "circa" – přibližně, asi	
C_xH_y	uhlovodíky	
$E + E_{(50)}$	tímto způsobem je v práci označen odhad součtu efektivních dávek ze zevního ozáření a úvazků efektivních dávek z vnitřního ozáření jednotlivce z kritické skupiny obyvatelstva	
eV	elektronvolt, množství energie, kterou potřebuje elektron na překonání elektrického potenciálu jednoho voltu	
GSD	geometric standard deviation – geometrická směrodatná odchylka	
GW(e)	gigawatt (produkované) elektrické energie	
	megatuna, v ekvivalentech megatun TNT je udávána energie	

Mt	uvolněná výbuchem jaderné zbraně		
Nml	normální mililitr, ekvivalentně též cm ³ _{STP} kde STP (Standard Temperature and Pressure) je standardní teplota ($T = 273,15$ K) a tlak ($p = 101325$ kPa)		
N _{nom}	nominální tepelný výkon reaktoru (100 %)		
рН	potential of hydrogen – záporná hodnota dekadického logaritmu koncentrace vodíkových iontů, udává kyselost nebo zásaditost roztoku		
pHT	vysokoteplotní pH		
ppm	z latiny "part per milion" – jedna k milionu (1 ppm = 10^{-4} %)		
SD	standard deviation – směrodatná odchylka		
man Sv	jednotka kolektivní efektivní dávky používaná v anglosaské literatuře		

Faktor	Předpona	Značka
10^{24}	yotta	Y
10^{21}	zetta	Ζ
$10^{18.}$	exa	E
10^{15}	peta	Р
10^{12}	tera	Т
10^{9}	giga	G
10^{6}	mega	Μ
10^{3}	kilo	k
10^{2}	hekto	h
10^1	deka	da
10^{-1}	deci	d
10^{-2}	centi	С
10^{-3}	mili	m
10^{-6}	mikro	μ
10^{-9}	nano	n
10^{-12}	piko	р
10^{-15}	femto	f
10^{-18}	atto	а
10^{-21}	zepto	Z
10^{-24}	yokto	У

Předpony a jejich značky¹

¹ Pozn.: Někdy jsou používány též činitele jednotek (a obecně vyjádření velkých a malých čísel) ve tvaru s písmenem E. Tedy např. údaj 1,23E12 odpovídá hodnotě $1,23 \cdot 10^{12}$, údaj 4,56E–06 odpovídá hodnotě $4,56 \cdot 10^{-6}$ apod. Toto značení vychází převážně z protokolů výpočtových programů a není obvykle upraveno do běžného exponenciálního tvaru. Jde pouze o formální způsob značení, bez vlivu na reálné hodnoty.

O B S A H

Ú	VOD		. 16
1		SOUČASNÝ STAV	. 18
	1.1	Základní údaje o radionuklidu ¹⁴ C	. 18
	1.2	Vyjadřování aktivit ¹⁴ C	. 19
	1.3	Produkce kosmogenního ¹⁴ C	. 20
	1.4	Produkce antropogenního ¹⁴ C	. 21
	1.5	Zkoušky jaderných zbraní	. 22
	1.6	Produkce a cesty uvolnění 14 C z jaderných reaktorů	. 24
	1.7	Přepracování vyhořelého paliva	. 30
	1.8	Chemický režim JE	. 31
	1.9	Plynné výpusti JE	. 33
	1.10	Charakteristika I.O., parametry a provozní údaje ETE	. 34
	1.11	Plynné radioaktivní odpady ETE	. 38
	1.12	Možnosti snižování produkce a uvolňovaného množství ¹⁴ C	. 41
	1.13	¹⁴ C v životním prostředí	. 42
	1.14	Radiotoxicita ¹⁴ C	. 44
	1.15	Dozimetrické modely pro výpočet dávkové zátěže od příjmu ¹⁴ C	. 47
2		CÍLE PRÁCE A HYPOTÉZY	. 49
3		METODIKA	. 50
	3.1	Měření aktivit ¹⁴ C v plynných výpustech ETE	. 50
	3.2	Sběr a zpracování dat	. 51
	3.3	Statistická analýza a interpretace výsledků	. 54
4		VÝSLEDKY	. 59
	4.1	Tabulky základních statistických charakteristik HVB1, HVB2 a BAPP	. 59
	4.2	Kumulativní rozdělení	. 61
	4.3	Analýza časových řad	. 67
	4.4	Rychlosti uvolňování chemických forem ¹⁴ C a výkon reaktorů	. 71

4.5	Relace mezi rychlostmi uvolňování chemických forem 14 C a koncentrací		
	amonných iontů v chladivu primárního okruhu reaktorů HVB1 a HVB2	. 79	
4.6	Relace mezi chemickými formami ¹⁴ C ve výpustech HVB1 a HVB2	. 87	
4.7	Průběh výpustí ¹⁴ C při odstávkách reaktorů	. 89	
4.8	Dávková zátěž	. 96	
5	DISKUSE VÝSLEDKŮ	. 99	
6	ZÁVĚR	104	
7	SEZNAM POUŽITÉ LITERATURY	107	
8	KLÍČOVÁ SLOVA	115	
PŘÍLOH	PŘÍLOHY		

Seznam obrázků

Obr. 1.1	Aktivita atmosférického ¹⁴ CO ₂ na severní a jižní polokouli v letech 1955–19942	3
Obr. 1.2	Jderné reakce přispívající ke vzniku ¹⁴ C2	4
Obr. 1.3	Zjednodušené schéma toků ¹⁴ C z lehkovodních reaktorů	0
Obr. 1.4	Celkový pohled na palivový soubor VVANTAGE 6; jaderný reaktor VVER 10003	5
Obr. 1.5	TS 20 – čistící stanice technologického odvzdušnění4	1
Obr. 1.6	Mechanismus přímého a nepřímého účinku ionizujícího záření4	6
Obr. 4.1	Kumulativní rozdělení toků $^{14}C_{sum}$ HVB1, HVB2 a BAPP ETE6	3
Obr. 4.2	Kumulativní rozdělení toků ¹⁴ CO ₂ HVB1, HVB2 a BAPP ETE6	4
Obr. 4.3	Kumulativní rozdělení toků ¹⁴ C _x H _y HVB1 a HVB2 ETE6	5
Obr. 4.4	Kumulativní rozdělení výkonových hladin reaktoru HVB1 ETE6	6
Obr. 4.5	Kumulativní rozdělení výkonových hladin reaktoru HVB2 ETE6	7
Obr. 4.6	Trend vyhlazení, toky ¹⁴ C _{sum} HVB16	9
Obr. 4.7	Trend vyhlazení, toky ¹⁴ C _{sum} HVB27	0
Obr. 4.8	Trend vyhlazení, toky ¹⁴ C _{sum} BAPP7	1
Obr. 4.9 s výkonei	Rychlosti uvolňování ${}^{14}CO_2$ a ${}^{14}C_xH_y$ po dnech ve vnitřním komínu HVB1, porovnár m reaktoru	ní 2
Obr. 4.1(0 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴ CO ₂ HVB1 na výkonu reaktoru	3
Obr. 4.1 1	1 Závislost rychlosti uvolňování ${}^{14}C_xH_y$ HVB1 na výkonu reaktoru7	4
Obr. 4.1 2 porovnán	2 Rychlosti uvolňování ${}^{14}CO_2$ a ${}^{14}C_xH_y$ po dnech ve vnitřním komínu HVB2 í s výkonem reaktoru	2, 5
Obr. 4.13	3 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴ CO ₂ HVB2 na výkonu reaktoru7	7
Obr. 4.14	4 Závislost rychlosti uvolňování ${}^{14}C_xH_y$ HVB2 na výkonu reaktoru7	8
Obr. 4.1 5 HVB2	5 Kumulativní rozdělení koncentrací NH_4^+ v chladivu primárního okruhu HVB1	a 0

Obr. 4.16 Změny rychlosti uvolňování 14 C a koncentrace NH ₄ ⁺ v chladivu I.O. na HVB181
Obr. 4.17 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴ CO ₂ HVB1 na na koncentraci NH ₄ ⁺ 82
Obr. 4.18 Závislost rychlosti uvolňování ${}^{14}C_{x}H_{y}$ HVB1 na koncentraci NH ₄ ⁺ 83
Obr. 4.19 Změny rychlosti uvolňování ¹⁴ C a koncentrace NH ₄ ⁺ HVB284
Obr. 4.20 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴ CO ₂ HVB2 na na koncentraci NH ₄ ⁺ 85
Obr. 4.21 Závislost rychlosti uvolňování ${}^{14}C_{x}H_{y}$ HVB2 na na koncentraci NH ₄ ⁺ 86
Obr. 4.22 Závislost toků organické a anorganické formy ¹⁴ C ve vnitřních komínech HVB1 a HVB2
Obr. 4.23 Časový průběh rychlosti uvolňování ¹⁴ C ve vnitřním komíně HVB1 v průběhu odstávek
Obr. 4.24 Časový průběh rychlosti uvolňování ¹⁴ C ve vnitřním komíně HVB2 v průběhu odstávek
Obr. 4.25 Doběh aktivity ¹⁴ C ve vnitřním komíně HVB1 po odstávce bloku94
Obr. 4.26 Doběh aktivity ¹⁴ C ve vnitřním komíně HVB2 po odstávce bloku

Seznam tabulek

Tab. 1.1 Světový inventář ¹⁴ C. 22
Tab. 1.2 Přehled objemových aktivit ¹⁴ C v primárním okruhu PWR
Tab. 1.3Zastoupení převládajících chemických forem ¹⁴ C v technologických částech JEs lehkovodními reaktory
Tab. 1.4 Chemické formy a cesty uvolňování ¹⁴ C z elektráren s lehkovodními typy reaktorů27
Tab. 1.5Porovnání relativního zastoupení chemických forem ¹⁴ C uvolňovaných do ovzduší zrůzných typů reaktorů
Tab. 1.6 Vypočtené rychlosti produkce ¹⁴ C z lehkovodních typů reaktorů
Tab. 4.1 Základní statistické charakteristiky parametrů pro vnitřní komín HVB1. 59
Tab. 4.2 Základní statistické charakteristiky parametrů pro vnitřní komín HVB2. 60
Tab. 4.3 Základní statistické charakteristiky parametrů pro vnitřní komín BAPP60
Tab. 4.4 Procentuální zastoupení ročních výpustí forem ¹⁴ C ve vnitřních komínech HVB1,HVB2 a BAPP
Tab. 4.5Vztahmezikvantilynormovanéhonormálníhorozděleníakumulativnímrozdělením
Tab. 4.6 Časový průběh odstávek HVB190
Tab. 4.7 Časový průběh odstávek HVB2. 90
Tab. 4.8 Snížení rychlostí uvolňování forem ¹⁴ C při nevýkonových stavech reaktoru HVB1 a HVB291
Tab. 4.9 Plynné výpusti ¹⁴ C ETE za rok
Tab. 4.10 Konzervativní hodnoty efektivní dávky z plynných výpustí ¹⁴ C ETE za rok.98
Tab. 4.11Odhad konzervativního navýšení aktivity 14C v biotě okolí ETE zpětným přepočtemz efektivních dávek

ÚVOD

"Vždyť ti, kteří budou usilovat o dokonalost, i když jí nedosáhnou, přece jen dojdou výš než ti, kteří se předem vzdají naděje, že by mohli dospět, kam by chtěli, a zastaví se hned dole. Nenajde se nikdo, kdo by vzdor úsilí nedosáhl ničeho."

M.F.Quintilianus

Jako každá průmyslová činnost i využívání jaderné energie přináší určitá rizika, možná nebezpečí pro člověka a životní prostředí. Při provozu jaderně energetických zařízení dochází k částečnému nežádoucímu úniku radioaktivních látek do životního prostředí a k následnému ozáření člověka. Vzhledem k fyzikálně chemické povaze vypouštěných radionuklidů dochází k místní, oblastní a globální kontaminaci životního prostředí radionuklidy.

Důležitým ukazatelem provozování jaderných elektráren jsou hodnoty výpustí radioaktivních látek do ovzduší a do vodotečí v jejich okolí. Aktivity výpustí radioaktivních látek mají přímý vliv na životní prostředí a na ozáření obyvatelstva v okolí jaderné elektrárny a jejich úrovně je proto nutné udržovat v souladu s principem optimalizace (ALARA) na nejnižší rozumně dosažitelné úrovni. Dosahované úrovně aktivit výpustí jsou mimo jiné v přímé závislosti na kvalitě provozovaného technologického zařízení a řízení technologických procesů v jaderné elektrárně.

Radionuklidy vznikající v průběhu palivového cyklu jaderného reaktoru jsou z provozních médií odstraňovány prostřednictvím systémů technologického čištění plynů a kapalných médií a následně likvidovány jako radioaktivní odpad. Některé radionuklidy není možné přes veškerá technická opatření zcela odstranit a jsou proto po provedení analýzy jejich potenciálních dopadů na životní prostředí řízeně uvolňovány do životního prostředí v podobě plynných a kapalných výpustí. Převažující část radionuklidů vznikajících při provozu jaderného reaktoru však zůstává ve vyhořelém palivu (Klener et al., 1987).

Uhlík 14 hraje významnou úlohu v znečišťování životního prostředí radioaktivními látkami. Uhlík patří k důležitým biogenním prvkům a účastní se biologických a velkého množství geologických procesů probíhajících na Zemi. Je základním prvkem všech organických sloučenin. V důsledku toho se mohou radioaktivní isotopy uhlíku, které se dostávají do životního prostředí, určitou měrou podílet na životních pochodech a vývoji živých organizmů včetně člověka.

S ohledem na dlouhý poločas přeměny ¹⁴C (5730 let) a stoupající trend produkce dochází ke dlouhodobé globální kontaminaci atmosféry a dalších složek životního prostředí, která může způsobit radiační zátěž budoucím generacím. Je proto důležité kontrolovat uvolňování ¹⁴C z jaderných zařízení a nakládání se vzniklými odpady.

Množství ¹⁴C uvolňované z jaderně energetických zařízení je značně pohyblivé a podrobnější příčinné analýzy u konkrétních zdrojů jsou cenným poznatkem doplňujícím naše znalosti. Cílem diplomové práce je zhodnotit plynné výpusti ¹⁴C z jaderné elektrárny Temelín a posoudit faktory které mohou ovlivňovat množství ¹⁴C v plynných výpustech. K tomuto účelu byly použity výsledky bilančních měření aktivit ¹⁴C vypouštěných do atmosféry ventilačními komíny HVB a BAPP ETE za období 2001–2006. Součástí práce je stručná analýza problematiky přirozené a antropogenní produkce ¹⁴C a jejich radioekologických aspektů.

1 SOUČASNÝ STAV

1.1 Základní údaje o radionuklidu ¹⁴C

Radionuklid ¹⁴C je čistý β zářič, který se přeměňuje s poločasem 5730 let na ¹⁴N, emisí částice se střední energií 49,5 keV (maximální energie 156,4 keV). Chemické vlastnosti ¹⁴C jsou totožné s isotopem ¹²C. V přírodě vzniká ¹⁴C zejména jadernou reakcí záchytem neutronů generovaných kosmickým zářením na jádrech ¹⁴N dle rovnice:

$$^{14}N(n, p)^{14}C$$
 (1.1)

Dále jsou uvedeny základní fyzikálně chemické a biologické charakteristiky ¹⁴C (Šeda et al., 1983; Stuiver & Polach, 1977; UNSCEAR, 2000):

Poločas přeměny	$T_{1/2} = 5\ 730\ \text{let}$
Biologický poločas	$T_b = 10 \text{ d} \text{ (celotělově), } 40 \text{ d} \text{ (tukové tkáně)}$
Měrná aktivita v přírodě	$a = 2,26 \cdot 10^2$ Bq kg ⁻¹ (přibližná hodnota rovnovážné aktivity v atmosféře a biotě před začátkem testů jaderných zbraní a masivního spalování fosilních paliv, konvenčně odpovídající roku 1890, v jednotlivých typech přírodních vzorků se tato hodnota mírně liší vlivem isotopické frakcionace)
Maximální celotělová přípustná aktivita	$MPBB = 1,48 \cdot 10^7 \text{ Bq}$
Množství uhlíku v těle (modelový jedinec)	MB = 13 kg
Denní příjem prvku	IN = 0,4 kg
Dávkový ekvivalent za rok, vztažený k přírodním zdrojům radionuklidu	$HN = 7,0 \cdot 10^{-6} \text{ Sv rok}^{-1}$ na gonády; $10^{-5} \text{ Sv rok}^{-1}$ celotělově; $1,6 \cdot 10^{-5} \text{ Sv rok}^{-1}$ na kostní dřeň
Dávkový ekvivalent vztažený na ingesci množství radionuklidu o aktivitě 1 Bq	$HI = 1,5 \cdot 10^{-7}$ Sv v tukových tkáních

Rozpad:	β^{-} (E _{max} 0,155 MeV)
Zdroje radionuklidu:	V přírodě vzniká zejména v atmosféře záchytem neutronů generovaných kosmickým zářením na jádrech dusíku 14 [¹⁴ N(n,p) ¹⁴ C], průměrná přirozená produkce vztažená na plochu zemského povrchu činí 2,5 atomů za sekundu na cm ² .
	Zdrojem antropogenního radiouhlíku byly zejména zkoušky nukleárních zbraní v 60. letech minulého století. V současnosti je ¹⁴ C uvolňován do životního prostředí z výpustí jaderně energetických zařízení (zejména reaktory a přepracovatelské závody).
Kritický orgán v lidském těle:	tuková tkáň

1.2 Vyjadřování aktivit ¹⁴C

Aktivita radiouhlíku se podle mezinárodní konvence udává jako δ^{14} C, což je relativní převýšení aktivity vzorku nad přírodní úroveň ¹⁴C. Hodnota δ^{14} C se vypočítá ze vztahu (Stuiver & Polach, 1977):

$$\delta^{14} C = \left(\frac{A}{A_{STD}} - 1\right) 1000 \quad \%$$
 (1.2)

kde *A* je aktivita vzorku a A_{STD} je 95 % aktivity tzv. moderního standardu. Moderní standard je referenční materiál definovaný jako aktivita radiouhlíku ve vzorcích dřevin pocházejících ze severní polokoule rostoucích do roku 1890, měřená v roce 1950. Rok 1890 byl zvolen, aby byl vyloučen vliv změn koncentrace ¹⁴C v atmosféře v důsledku nárůstu spalování fosilních paliv ve 20. století. V praxi jsou laboratorní měření radiouhlíku porovnávána se standardem kyseliny oxalové ze zásoby připravené NBS (dnešní NIST).

Po korekci na isotopickou frakcionaci (isotopický poměr) se δ^{14} C vyjadřuje jako Δ^{14} C podle vztahu:

$$\Delta^{14}C = \delta^{14}C - \left(2\delta^{13}C + 50\right)\left(1 + \frac{\delta^{14}C}{1000}\right) \quad (1.3)$$

kde δ^{13} C vyjadřuje poměr stabilních isotopů uhlíku ve vzorku normalizovaných k PDB standardu:

$$\delta^{13} C = 1000 \left(\frac{\binom{13}{C}}{\binom{13}{C}_{PDB}} - 1 \right) \%$$
(1.4)

Hodnota δ^{13} C se určuje pomocí hmotnostní spektrometrie (Bosá, 2001). PDB standard (zkratka slov PeeDee Belemnite) je vápenec tvořený kalcifikovanými schránkami belemnitů druhu Belemnitella americana z útvaru Peede v USA (Šivo, 2006). PDB slouží jako mezinárodní referenční standard k vyjádření poměru stabilních isotopů uhlíku.

Pro potřeby geochemie a studia distribuce ¹⁴C v životním prostředí byla zavedena veličina pMC (percentage of Modern Carbon) (Stuiver & Polach, 1977):

$$pMC = \frac{A}{A_{STD}} 100 \quad \% \tag{1.5}$$

význam symbolů je stejný jako v rovnici 1.2.

1.3 Produkce kosmogenního ¹⁴C

Uhlík je v přírodě zastoupen třemi nuklidy ¹²C (98,9 %, stabilní), ¹³C (1,1 %, stabilní) a ¹⁴C (přibližně 10^{-10} %, radioaktivní) (Veselý et al., 1986). V přírodě vzniká především již uvedeným záchytem neutronů na jádrech dusíku.

Radioaktivní uhlík ¹⁴C je díky svému rozšíření v zemské atmosféře přítomen i v živých objektech. Přibližně 10 % hmotnosti tkání člověka je tvořeno uhlíkem. V atmosféře se ¹⁴C rychle oxiduje na ¹⁴CO₂, fotosyntézou se dostává do rostlin a odtud do

potravinového řetěze. V lidském organizmu přispívá ¹⁴C k vnitřnímu ozáření. Aktivita ¹⁴C v lidském těle se odhaduje na $2,5 \cdot 10^3$ Bq (Švec et al., 2006).

Živé organizmy si vyměňují s okolím CO₂ a relativní zastoupení uhlíku ¹⁴C v atmosféře i v živých objektech je tak v daném čase přibližně stejné. Pokud živý objekt zemře, výměna CO₂ s okolím ustane a relativní zastoupení uhlíku ¹⁴C v mrtvém objektu klesá s časem v důsledku jeho radioaktivního rozpadu. Protože je relativní zastoupení ¹⁴C v atmosféře v čase přibližně konstantní, neboť uhlík ¹⁴C je v přírodě neustále produkován, lze stanovení ¹⁴C využít pro datování. Radiouhlík je v atmosféře přítomen především v chemické formě ¹⁴CO₂. Zastoupení dalších forem uhlíku v ovzduší jsou řádově nižší (koncentrace CH₄ a CO představuje obvykle zlomky procenta koncentrace CO₂, koncentrace ostatních uhlovodíků jsou o dalších několik řádů nižší) (SÚRO, 2004). Aktivita ¹⁴CH₄ ve formě metanu zpravidla přibližně sleduje časový průběh jeho aktivity ve formě CO₂. Uhlík ve formě CO ve městech pochází zejména ze spalování fosilních paliv a aktivita ¹⁴C je zde proto spíše nižší (SÚRO, 2004). Odhadovaná efektivní dávka od kosmogenního ¹⁴C činí 12 µSv rok⁻¹. Produkce kosmogenního ¹⁴C v atmosféře činí asi 1,54 PBq rok⁻¹, globální inventář 12 750 PBq a objemová aktivita v troposféře 56,3 mBq m⁻³ (UNSCEAR, 2000).

1.4 Produkce antropogenního ¹⁴C

Využívání jaderné energie k vojenským i mírovým účelům vede k produkci radionuklidů včetně ¹⁴C. Hlavními zdroji antropogenního ¹⁴C byly v minulosti zkoušky jaderných zbraní a v současnosti zejména jaderná energetika. Současné zdroje antropogenního ¹⁴C v životním prostředí, především jaderně-energetická zařízení, jsou relativně malé ve srovnání s přirozenou produkcí (Světlík et al., 2004a).

Jevem, který významně ovlivňuje aktivitu ¹⁴C v atmosféře je tzv. Suessův efekt, jehož důsledek se začal významněji projevovat v 90. letech předminulého století (Šivo, 2006). Spalováním velkého množství fosilních paliv (uhlí, ropa, plyn) se do atmosféry dostává neaktivní uhlík, který snižuje poměr ¹⁴C/¹²C, což má za následek pokles aktivity ¹⁴C v atmosféře (Šivo, 2006). Tento efekt poprvé experimentálně prokázal Suess (1954) a dostal název "Suessův efekt". Podle Suesse způsobil tento efekt do roku 1950 až 3%

pokles atmosférické koncentrace ¹⁴C. Po roce 1950 je Suessův efekt maskován zvýšenou produkcí ¹⁴C v důsledku zkoušek jaderných zbraní. Celkový světový inventář ¹⁴C s podílem jednotlivých příspěvků je uveden v tab. 1.1.

Zdroj	Inventář (PBq)	Uvolňování do životního prostředí (PBq rok ⁻¹)	Podíl z inventáře (%)
Přirozená kosmogenní produkce	12 750	1,54	98,34
Testy jaderných zbraní	213	_	1,64
Jaderně energetická zařízení	2,8	0,15 ^{a, b}	0,02
Celkem	12 966	1,69	100

Tab. 1.1 Světový inventář¹⁴C (UNSCEAR, 2000).

^a údaje se vztahují k rozmezí let 1995–1997

^b přepočteno

1.5 Zkoušky jaderných zbraní

Při jaderné explozi se vytváří ¹⁴C především záchytem neutronů na jádrech ¹⁴N. Při mohutných atmosférických explozích jaderných zbraní je většina ¹⁴C transportována do stratosféry, odkud přechází do troposféry s poločasem 1–2 roky (UNSCEAR, 1977). Množství vzniklého ¹⁴C není závislé jen na velikosti jaderné nálože, ale rovněž na jejím typu, výšce ve které exploduje a některých dalších faktorech. Při pozemních jaderných explozích za jinak stejných podmínek vzniká přibližně o polovinu menší množství ¹⁴C než při zkouškách v atmosféře, v důsledku toho, že při pozemních testech je přibližně 50 % vzniklých neutronů pohlceno zemským povrchem (WHO, 1983).

Po zkouškách jaderných zbraní provedených v letech 1945–1963 byla aktivita ¹⁴C ve složkách životního prostředí, jako jsou povrchové a srážkové vody, ovzduší a biota téměř výrazně navýšena nad úroveň vyplývající z přirozené produkce. V literatuře bývá toto navýšení často označováno jako tzv. "radiouhlíkový bombový pík" (Světlík et al., 2004a).

Radioaktivní spad po zkouškách jaderných zbraní v atmosféře se rozšířil zejména na severní polokouli, kde byla provedena většina zkušebních explozí zbraní velké ráže. Maximální koncentrace ¹⁴C byla pozorována v roce 1963, kdy došlo k 90–100% převýšení přírodní úrovně ¹⁴C. Po podepsání dohody o zákazu zkoušek jaderných zbraní v atmosféře, pod vodou a v kosmickém prostoru v roce 1963 začala koncentrace ¹⁴C v atmosféře severní polokoule klesat (Šivo, 2006). Koncentraci ¹⁴C v atmosféře v letech 1955–1994 ukazuje obr. 1.1.



Obr. 1.1 Aktivita atmosférického ${}^{14}CO_2$ na severní a jižní polokouli v letech 1955–1994, uvedeno v pMC, percentage of Modern Carbon (Stuiver & Polach, 1977). Převzato z (Dubourg, 2000).

Rovnováha mezi severní a jižní polokoulí byla dosažena přibližně v letech 1967–1968 (Levin et al., 1980). V následujících letech se pokles zpomalil a aktivita ¹⁴C se zvolna přibližuje rovnovážné úrovni dané především přirozenou produkcí. Tento trend ovlivňuje výměna mezi jednotlivými rezervoáry a přísun CO_2 s nulovým obsahem ¹⁴C do atmosféry v důsledku spalování fosilních paliv (Bosá, 2001).

Zejména vlivem ukládání v oceánských vodách a sedimentech se aktivita ¹⁴C snížila a v současnosti nepřevyšuje přirozenou hodnotu o více než 10 % (SÚRO, 2004).

1.6 Produkce a cesty uvolnění ¹⁴C z jaderných reaktorů

Nejvýznamnějšími cestami vzniku ¹⁴C v jaderných reaktorech jsou následující neutronové aktivační reakce (IAEA, 2004):

- a) ${}^{14}N(n,p){}^{14}C$ reakce záchytem tepelných neutronů s velmi vysokým účinným průřezem (1,82 barnů, 1 barn = 10^{-24} cm²),
- b) ${}^{17}O(n,\alpha){}^{14}C$ záchytem tepelných neutronů s velmi účinným průřezem (0,24 barnů),
- c) ${}^{13}C(n,\gamma){}^{14}C$ reakce s nízkým účinným průřezem (0,9 · 10⁻³ barnů),
- d) 15 N(n,d) 14 C reakce s velmi nízkým účinným průřezem (2,5 · 10⁻⁷ barnů),
- e) ${}^{16}O(n,3He){}^{14}C$ reakce s velmi nízkým účinným průřezem $(5,0 \cdot 10^{-8} \text{ barnů})$.

Na obr. 1.2 je znázorněn přehled všech reakcí které mohou přispívat ke vzniku ¹⁴C.



Obr. 1.2 Jderné reakce přispívající ke vzniku ¹⁴C (WHO, 1983).

¹⁴C vzniká v jaderném reaktoru především reakcí ¹⁴N(n,p)¹⁴C na jádrech ¹⁴N přítomném v palivu jako nečistota a na ¹⁴N v primárním okruhu; ¹⁷O(n,α)¹⁴C reakcí na jádrech ¹⁷O přítomného v oxidech v palivu a na jádrech ¹⁷O přítomného v moderátoru. Mírně může též přispívat reakce ¹³C(n,γ)¹⁴C a ternární neboli trojné štěpení (málo pravděpodobné štěpení na jednu lehkou a dvě středně těžké jaderné částice) ²³⁵U a ²³⁹Pu.

Kyslík je hlavní složkou moderátoru a paliva, zatímco dusík se vyskytuje pouze jako nečistota v chladivu, palivu a konstrukčních materiálech (CHEMCOMEX, 1999). V některých případech je dusík rovněž přidáván do chladiva s chemickými látkami (NH₃, N₂H₄) (CHEMCOMEX, 1999). Zastoupení ¹⁷O v přirozeném kyslíku činí 0,038 %. Vzduch rozpuštěný v chladivu bude rovněž přispívat k produkci ¹⁴C aktivací ¹⁴N (dusík tvoří asi 78 % objemu vzduchu, zastoupení ¹⁴N v dusíkové isotopické směsi činí přibližně 99,634 % molárních procent) (De Bievre & Taylor, 1993).

Za předpokladu těsnosti paliva lze u lehkovodních tlakových reaktorů uvažovat z hlediska emisí pouze chladivo. Při aktivaci chladiva (H₂O) dominuje tvorba radionuklidu ¹⁶N s poločasem rozpadu 7 s. Tento radionuklid je dominantní z hlediska radiace vody I.O. za provozu reaktoru (EGP, 2004). Vlivem intenzivního radiačního pole může docházet k řadě chemických reakcí ovlivňujících chemickou formu ¹⁴C. Obsah ¹⁴C v roztoku primárního okruhu PWR se mění v závislosti na režimu odvětrávání a parametrech provozu reaktorů (EPRI, 1995). V tab. 1.2 je uveden přehled pozorovaných objemových aktivit ¹⁴C.

	Výkon reaktoru	Aktivita	
Název – země	(MW(e))	$(kBq l^{-1})$	Reference
Ginna – USA	490	2,9–4,8	Kunz, 1985
Indian Point – USA	1000	21–28	Kunz, 1985
Paks – Maďarsko	440	4	Veres, 1995
Paks – Maďarsko	440	0,77–6,3	Szantó, 1997

Tab. 1.2 Přehled objemových aktivit ¹⁴C v primárním okruhu PWR (Světlík & Tomášková, 2005).

Hlavní příspěvek produkce v chladivu (asi 90 %) představuje aktivace ¹⁷O (CHEMCOMEX, 1999). Úroveň ¹⁴N v chladivu a tím i příspěvek z jeho aktivace je obtížně zjistitelný. Hlavní podíl ¹⁴C je z chladiva rychle uvolňován. Na ionexových filtrech se zachytává jen malý podíl (1–3 %) ¹⁴C (CHEMCOMEX, 1999).

 14 C se v I.O. ETE vyskytuje z 99 % v plynné formě (metan, oxid uhličitý) a rovnovážné koncentrace v chladivu je dosaženo přibližně po jednom měsíci provozu. Objemová aktivita 14 C vznikající aktivací chladiva je o dva řády vyšší než z aktivace

příměsí chladiva a z korozních produktů. (EGP, 2004). Z hlediska obsahu forem ¹⁴C v chladivu primárního okruhu jsou u lehkovodních tlakových reaktorů převládající formou těkavé organické sloučeniny, zejména ¹⁴CH₄, ¹⁴C₂H₆ a v menší míře další převážně lehké uhlovodíky (Smith, 2002; Veres, 1995), jak uvádí tab. 1.3.

Tab. 1.3 Zastoupení převládajících chemických forem ¹⁴C v technologických částech JE s lehkovodními reaktory (EPRI, 1995).

	PWR	BWR
Chladicí voda	58–95 % organické formy	52–87 % anorganické formy
	(modifikující faktory: tlak vodíku, přídavek dusíku, režim odplyňování).	(modifikující faktory: tlak vodíku)
Plynné výpusti	80–94 % organické formy	97 % anorganické formy
Ionexové kolony	79–92 % organické formy ^a	42-100 % organické formy

^a dochází zde rovněž k sorpčnímu záchytu organických forem, tj. nikoliv cestou iontové výměny

Z publikovaných údajů lze jako hlavní formu uhlovodíků (~90 %) předpokládat tritiovaný metan (CHEMCOMEX, 1999). Metan vzniká reakcí ¹⁴C s atomárním vodíkem dle rovnice:

$$^{14}C + 4H \rightarrow ^{14}CH_4 \tag{1.6}$$

Za běžného provozu přechází ¹⁴C z chladiva především do plynných výpustí, pro lehkovodní tlakové reaktory je uváděna hodnota přibližně 95 % celkového množství uvolněného ¹⁴C (Kunz, 1985; Smith, 2002; EPRI 1995). Celkové množství ¹⁴C uvolněného do životního prostředí, vyjádřené jako podíl z celkové produkce, je v průměru 50 % u BWR a 30 % u PWR, hodnoty jsou však značně variabilní (WHO, 1983).

V tab 1.4 jsou uvedeny z literatury dostupné údaje o chemických formách a cestách uvolňování ¹⁴C z některých jaderných elektráren s PWR a BWR reaktory.

Parametr	R.E. Ginna PWR 490 MW(e)	Indian Pt. Unit 3 PWR 1 000 MW(e)	J.A. FitzPatrick BWR 850 MW(e)
Plynné výpusti ¹⁴ C ^a	429	355	459
$(GBq GW(e)^{-1} rok^{-1})$			
Chemická forma: ¹⁴ CO ₂	10 %	26 %	95 %
¹⁴ CH ₄ , ¹⁴ C ₂ H ₆ , a ostatní plynné uhlovodíky	90 %	74 %	5 %
Cesta uvolnění:			
Čistící stanice technologického odvzdušnění ^b	42 %	7 %	_
Odvětrávání kontejmentu	23 %	78 %	_
Odvětrávání pomocných aktivních technologických systémů	35 %	15 %	3 %
Výpusti plynných odpadů	_	_	97 %

Tab. 1.4 Chemické formy a cesty uvolňování ¹⁴C z elektráren s lehkovodními typy reaktorů (Kunz, 1985; EPRI, 1995).

^a přepočteno z Ci $GW(e)^{-1} rok^{-1}$

^b vymírací nádrže aktivních plynů

Pro všechny typy reaktorů, kromě PWR, je ¹⁴C uvolňován především ve formě CO₂. V případě varných reaktorů (BWR) tvoří 80–95 % uvolněného ¹⁴C forma CO₂ a 5–20 % uhlovodíky. Pro HWR reaktory platí, že přibližně 80 % celkového uvolněného ¹⁴C je formě CO₂ a asi 20 % ve formě uhlovodíků. V porovnání s tím jsou tvořeny plynné výpusti ¹⁴C PWR převážně uhlovodíky (75–95 %), především metanem, s pouze malou frakcí ve formě CO₂ (WHO, 1983). V literatuře uváděné podíly zastoupení chemických forem ¹⁴C prezentuje tab. 1.5.

	¹⁴ CO ₂ (%)	¹⁴ CO (%)	¹⁴ C uhlovodíky (%)
HWR (Bruce unit 7,	65,5-72,8	0,2–3,7	26,7–34,4
Kanada)			
HWR (Gentilly 2,	77,9–97,5	0,01-0,09	25-22
Kanada)			
PWR (USA a Evropa)	5-25	_	$75-95^{a}$
BWR (USA a Evropa)	80-95	_	5-20

Tab. 1.5 Porovnání relativního zastoupení chemických forem ¹⁴C uvolňovaných do ovzduší z různých typů reaktorů (IAEA, 2004).

^a především formy CH_4 a C_2H_6

Předpokládané chemické formy ¹⁴C ve vzdušnině ventilačních komínů; HVB a BAPP ETE jsou oxid uhličitý (¹⁴CO₂), oxid uhelnatý (¹⁴CO), metan (¹⁴CH₄), a vyšší uhlovodíky (¹⁴C_xH_y). Nelze vyloučit ani ¹⁴C vázaný na pevných částicích. Uváděné zastoupení ¹⁴CO ve výpustech činí asi 1 % (CHEMCOMEX, 1999).

V ETE dochází k uvolňování ¹⁴C především při odplyňování chladiva a únicích chladiva. Hlavní cestou výpustí ¹⁴C je ventilační komín, sekundární pak odvětrávání jímek vývěv turbín (CHEMCOMEX, 1999). Hlavní cestou výpustí jsou ventilační komíny HVB, ventilačním komínem BAPP je uvolňované množství ¹⁴C řádově nižší.

Produkce ¹⁴C je závislá na výkonu reaktoru, resp. hustotě toku neutronů, počtu terčových jader a mikroskopickém účinném průřezu aktivační reakce. Množství ¹⁴C produkovaného v reaktoru může být vypočteno z rovnice (Bray, 1977):

$$A = \frac{dN}{dt} = N.\sigma.\phi - N.\sigma.\phi.e^{-\lambda t_i} = \frac{f.m.L}{M}\sigma.\phi.(1 - e^{-\lambda.t_i})$$
(1.7)

kde *A* je vyprodukovaná aktivita (rozpad za sekundu), *f* relativní isotopické zastoupení terčového nuklidu, *L* Avogadrova konstanta $(6,025 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1})$, σ mikroskopický účinný průřez pro tepelné neutrony v barnech (10^{-24} cm^2) , ϕ neutronový tok (n cm⁻² s⁻¹), λ rozpadová konstanta ¹⁴C (s⁻¹), t_i doba ozáření v sekundách, *N* počet terčových jader,

m hmotnost terčového prvku v gramech, *M* atomová hmotnost terčového nuklidu $(g \text{ mol}^{-1})$.

Rychlosti produkce ¹⁴C se liší v závislosti na typu reaktoru. V literatuře je pro rychlost produkce ¹⁴C v chladivu lehkovodních tlakových reaktorů uváděna hodnota přibližně 190 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹, v palivu 560 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹a konstrukčních materiálech 930 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹ (EPRI, 1995; Světlík & Tomášková, 2005). Údaje jsou normalizovány na jednotku produkované elektrické energie. V tab. 1.6 jsou uvedeny vypočtené rychlosti produkce ¹⁴C pro lehkovodní typy reaktorů publikované IAEA (2004).

Tab. 1.6 Vypočtené rychlosti produkce ${}^{14}C$ z lehkovodních typů reaktorů v GBq GW(e) ${}^{-1}$ rok ${}^{-1}$ (IAEA, 2004).

	Palivo	Pokrytí paliva	Chladivo a moderátor	Suma
PWR	480	740	260	1 480
BWR	470	630	190	1 290

CHEMCOMEX (1999) uvádí následující údaje: naměřené imisní hodnoty se u amerických a finských tlakovodních reaktorů pohybují v intervalu 93–430 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹, střední hodnota činí 390 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹. Několikaleté sledování JE J. Bohunice udává průměrné hodnoty 644 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹ (EBO V1) a 418 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹ (EBO V2). Maďarská elektrárna Paks uvádí hodnotu 820 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹. Střední hodnota německých PWR elektráren činí 190 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹, interval 70–440 GBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹.

Obr. 1.3 ukazuje celkové schéma toků ¹⁴C z lehkovodních reaktorů a závodů na přepracování vyhořelého jaderného paliva.



Obr. 1.3 Zjednodušené schéma toků ¹⁴C z lehkovodních reaktorů (IAEA, 2004).

1.7 Přepracování vyhořelého paliva

Zatímco ¹⁴C vyprodukovaný v chladivu a moderátoru může být bezprostředně uvolňován z jaderného reaktoru, v palivu vzniklý ¹⁴C může být dále uvolněn až v průběhu přepracování vyhořelého paliva (UNSCEAR, 2000; EPRI, 1995; Světlík & Tomášková, 2005, WHO, 1983). Radiochemické přepracování vyhořelého jaderného paliva je z hlediska radiačního rizika nejzávažnějším technologickým procesem palivového cyklu (Klener et al., 1987).

V přepracovatelských závodech je významná část ¹⁴C (asi 40–50 % pro palivo PWR) při chemickém rozpuštění uvolněna z vyhořelého paliva ve formě plynných odpadů. Zbývající ¹⁴C zůstává v nerozpustném kovovém pokrytí paliva, se kterým se dále nakládá jako s pevným radioaktivním odpadem (IAEA, 2004).

Technologické operace v přepracovatelských závodech jsou vykonávány s dálkovým ovládáním a přiměřenými bezpečnostními opatřeními. Při přepracování se palivové elementy nejprve mechanicky rozřezávají. Určitá část ¹⁴C přítomná v plynovém prostoru uvnitř palivových proutků je v této etapě uvolněna formou plynných odpadů. Touto cestou se uvolňuje jen velmi malý podíl z celkového množství ¹⁴C v palivu

(IAEA, 2004). Následují další technologické operace, ke kterým patří rozpouštění, filtrace a extrakce. Části palivových proutků se vloží do kyseliny dusičné (HNO₃), kde se palivo rozpustí a oddělí se od zirkoniového povlaku, který je chemicky stálý. Téměř celý inventář ¹⁴C obsažený v palivových elementech se uvolní v průběhu chemického rozpuštění paliva (WHO, 1983; IAEA, 2004). Během rozpouštění přejde většina ¹⁴C z roztoku do plynné fáze. Uhlík je téměř kvantitativně oxidován na CO₂, který se stává součástí plynných odpadů.

Množství ¹⁴C obsažené v kyselém dusičnanovém roztoku je ve srovnání s plynnými odpady a pokrytím paliva nevýznamné. V závislosti na konstrukci a účinnosti systému čištění plynných odpadů, je ¹⁴C uvolňován do ovzduší, nebo je jímán, solidifikován a likvidován s ostatními radioaktivními odpady.

1.8 Chemický režim JE

Hlavním cílem chemického režimu I.O. je zajištění integrity jeho potrubí, komponent, pokrytí palivových proutků, pokrytí komponent AZ a kontrola radiačních polí v jeho okolí. Podstatné je rovněž omezení fluktuací optimální hodnoty pH v důsledku prováděných provozních operací.

Chladivo I.O. je téměř neustále vystaveno silnému neutronovému toku a radiaci v AZ. Důsledkem toho je existence radiolytických reakcí, které vedou k rozkladu vody a některých dalších látek přítomných v chladivu. Jde o rozsáhlý komplex reakcí s vysokou reakční rychlostí a velkou proměnlivostí průběhu podle okamžitých lokálních podmínek (EGP, 2004). Radiolýza vody vede ke vzniku celé řady reaktivních volných radikálů a některých molekulárních produktů, kterými jsou plynný kyslík a plynný vodík (oba se rozpouští ve vodě). Vzniklý kyslík a chemické sloučeniny mohou způsobit velmi intenzívní korozi všech materiálů použitých v I.O. Potlačení koncentrace vzniklého kyslíku na limitní mez se dosahuje přítomností vodíku. Vliv kyseliny borité na korozi konstrukčních materiálů je eliminován dávkováním alkálií a vytvořením slabě zásaditého prostředí (ČEZ, 2002).

U reaktorů typu VVER k dosažení snížení tvorby a působení radiolytického kyslíku používají různé přístupy. Běžně se do chladiva primárního okruhu s doplňovanou vodou

dávkuje amoniak (NH₃) a jeho radiolytickým rozkladem je v chladivu udržována koncentrace vodíku. Přitom vzniká kromě vodíku i plynný dusík. Přebytkem rozpuštěného vodíku je potlačena radiolytická tvorba kyslíku. Radiolytická tvorba vodíku závisí na výkonu reaktoru (Zmítko, 2004). Tento způsob je odlišný od způsobu používaného u ostatních PWR, kde je dávkován plynný vodík do nádrže doplňování chladiva a není tedy ovlivňován činností reaktoru. Typická koncentrace amoniaku v chladivu primárního okruhu reaktoru VVER se pohybuje v rozmezí 1–15 ppm a výsledná koncentrace vodíku v rozmezí 25–35 Nml kg⁻¹ (Zmítko, 2004). Obecný vztah (korelace) mezi koncentrací amoniaku a výkonem reaktoru (úrovní radiace) není znám. V přechodových režimech bloku (odstavování nebo spouštění) je k zajištění potřebné koncentrace vodíku nutné měnit úměrně koncentraci amoniaku (EGP, 2004).

V některých případech je k dosažení koncentrace vodíku v chladivu primárního okruhu používán namísto amoniaku také hydrazin (N_2H_4). V takovém případě je hydrazin průběžně dávkován do chladiva, kde se v důsledku tepelných a radiolytických procesů rozkládá na amoniak, vodík a dusík. Hydrazinový chemický režim chladiva byl vyvinut za účelem snížení nárůstu radioaktivity na vnitřních površích primárního okruhu. V současnosti se hydrazinový chemický režim používá na Jaderné elektrárně Paks v Maďarsku. Tento chemický režim je doprovázen vyšší úrovní amoniaku a vodíku v porovnání s amoniakovým chemickým režimem. Koncentrace amoniaku leží v rozmezí 30–40 ppm, koncentrace vodíku se pohybuje v rozmezí 40–60 Nml kg⁻¹ (Zmítko, 2004).

Základní chemický režim chladiva I.O. na ETE je amoniakový chemický režim (pH_{300} v rozmezí 7,0–7,2). Hydrazin je do I.O. přidáván pouze během najíždění bloku po odstávce; k odstranění zbytkové koncentrace kyslíku v důsledku nedostatečného odplynění doplňovaného roztoku kyseliny borité (Koc et al., 2004).

Obsah amonných iontů a výkon reaktoru přímo ovlivňují koncentraci vodíku v chladivu primárního okruhu a společně se změnou pH a teploty v důsledku souvisejících změn oxidačně-redukčních potenciálů nepřímo ovlivňují výskyt různých radionuklidů v chladivu. Tento vliv je zřejmý zejména během přechodových režimů jako jsou odstavování nebo najíždění bloku (Koc et al., 2004). Množství chemikálií

v I.O. se snižuje odplyňováním a odpouštěním chladiva. Přídavek sloučenin s obsahem dusíku k úpravě chladiva má vliv na produkci a množství uvolňovaného ¹⁴C (Veres, 1995; IAEA, 2004; Světlík & Tomášková, 2005).

1.9 Plynné výpusti JE

Plynné radioaktivní výpusti vznikají při čištění chladiva primárního okruhu, při odvětrávání malých úniků chladiva netěsnostmi zařízení primárního okruhu, při doplňování nebo výměně paliva v reaktoru, z odvětrávání pomocných a aktivních technologických systémů. Dalším zdrojem plynných odpadů je vzduch obsahující radionuklidy vzniklé aktivací prvků obsažených ve vzdušnině používané k chlazení šachty reaktoru (EGP, 2004).

Při hodnocení účinku plynných výpustí na životní prostředí a obyvatelstvo je nutno zvažovat následující cesty ozáření (INVESTPROJEKT, 2000):

- vnější ozáření organizmu radionuklidy z vlečky výpustí,
- vnější ozáření organizmu radionuklidy usazenými na zemském povrchu (v důsledku suchého vypadávání a vymývání z vlečky),
- vnitřní ozáření organizmu při inhalaci kontaminovaného vzduchu při průchodu vlečky výpustí,
- vnitřní ozáření organizmu způsobené inhalací kontaminovaného vzduchu v důsledku resuspenze původně usazených radionuklidů,
- vnitřní ozáření organizmu z ingesce potravinových produktů kontaminovaných atmosférickým spadem (zde je zvažován transport radionuklidů v celém potravinovém řetězci).

Při šíření vlečky výpustí do okolí z oblaku vypadávají a jsou vymývány aerosoly, které se pak usazují na zemském povrchu. Část původně usazených radionuklidů je vystavena působení větru, deště, sněhu a jiným povětrnostním vlivům, které odnáší usazeniny; v případě dešťových srážek se část radionuklidů dostává do vodotečí. Radionuklidy usazené na propustných površích postupem času migrují do hlubších vrstev půdy. Externí ozáření z deponovaných radionuklidů tvoří nejmenší příspěvek k efektivní dávce ze všech uvažovaných cest (méně než 1%) (INVESTPROJEKT, 2000).

Radionuklidy, které vypadávají nebo jsou vymývány z vlečky, se postupně dostávají do vod, půdy a jsou přijímány kořenovým systémem a listy rostlin. Poté mohou být přenášeny potravním řetězcem a přijímány člověkem.

Plynné výpusti ¹⁴C z jaderných elektráren s lehkovodními tlakovými typy reaktorů jsou tvořeny převážně uhlovodíky, především metanem. Metan je relativně stabilní a téměř nedochází k jeho lokálnímu záchytu. Forma CO₂ může být zachytávána rostlinami cestou fotosyntézy v blízkém okolí zejména v průběhu meteorologických jevů jako jsou atmosférická inverze, bezvětří, déšť, mlha (UNSCEAR, 2000; Světlík et al., 2004b).

Globálně rozptýlený ¹⁴C nepřispívá k externímu ozáření člověka a jeho příspěvek k vnitřnímu ozáření cestou vdechnutí je zanedbatelný (UNSCEAR, 2000). Expozice tímto radionuklidem je prakticky výlučně způsobena jeho příjmem cestou ingesce (UNSCEAR, 2000).

Kolektivní efektivní dávky z radionuklidu ¹⁴C uvolňovaného jadernými reaktory v období 1990–1994, jsou odhadovány na 0,059 Sv (GW rok)⁻¹ pro lehkovodní tlakové reaktory PWR a 0,14 Sv (GW rok)⁻¹ pro varné reaktory BWR (UNSCEAR 2000). Údaje jsou normalizovány na jednotku vyrobené elektrické energie.

1.10 Charakteristika I.O., parametry a provozní údaje ETE

Jaderná elektrárna Temelín je tvořena dvěma bloky s tlakovodními reaktory VVER 1000 V 320. Oba výrobní bloky jsou dvouokruhové tzn. skládají se z primárního a sekundárního okruhu (Cencinger, 2003). V aktivní zóně reaktoru je umístěno jaderné palivo v němž dochází ke štěpení jader ²³⁵U působením tepelných neutronů, při kterém se uvolňuje velké množství tepla (EGP, 2004). Vzniklé teplo odvádí primární chladivo, které proudí do tepelného výměníku (parogenerátoru) a ochlazené se vrací přes hlavní cirkulační čerpadlo zpět do reaktoru (EGP, 2004), kde se znovu ohřeje a celý proces přeměny a přenosu tepla se znovu opakuje. Parogenerátor odděluje radioaktivní primární okruh od neaktivního sekundárního okruhu (Cencinger, 2003). Tepelná energie se přenáší dále do sekundárního okruhu, kde dochází ke konverzi na energii mechanickou a elektrickou (Cencinger, 2003).

Jako palivo je použit nízkoobohacený oxid uranu (UO₂), který je ve formě tablet naplněn do zircaloyových trubek (zircaloy – 4) palivových proutků. Proutky jsou po natlakování inertním plynem (helium pod tlakem cca 1 až 2 MPa) hermeticky uzavřeny koncovými uzávěry a utěsněny těsnicím svarem. Chladivem a současně moderátorem je demineralizovaná voda s obsahem kyseliny borité (EGP, 2004).



Legenda: 1 – regulační tyče, 2 – víko tlakové nádoby reaktoru, 3 – těleso reaktoru, 4 – přítoková a odtoková hrdla, 5 – tlaková nádoba reaktoru, 6 – aktivní zóna, 7 – palivové proutky

(a)

(b)

Obr. 1.4 (a) Celkový pohled na palivový soubor VVANTAGE 6 (EGP, 2004); (b) jaderný reaktor VVER 1000 (Wikipedia, 2005).

Obr 1.4 ukazuje pohled na palivový soubor a schéma tepelného reaktoru ETE. Dále je uveden výčet základních parametrů a provozních údajů ETE (ČEZ, 1998; INVESTPROJEKT, 2000):

Reaktor

Heterogenní, tlakovodní energetický reaktor VVER–1000 typ	o V320
Nominální tepelný výkon reaktoru	3 000 MWt
Technické parametry reaktoru	
Výška tlakové nádoby	10,9 m
Vnitřní průměr tlakové nádoby	4,1 m
Vnější průměr tlakové nádoby	4,5 m
Celková síla stěny válcové části nádoby	200 mm
Tloušťka výstelky z austenitické oceli	7 mm
Celková hmotnost	800 t
Aktivní zóna reaktoru	
Počet palivových souborů	163
Počet palivových proutků v souboru	312
Počet svazků s absorpčními elementy	61
Počet absorpčních elementů jednoho svazku	18
Výška aktivní zóny	3,63 m
Průměr aktivní zóny	3,16 m
Obohacení paliva při první zavážce	1,3–3,67 % ²³⁵ U
Hmotnost palivového souboru	766 kg
Hmotnost paliva (UO ₂) v jedné kazetě	563 kg
Vsázka paliva (UO ₂)	92 t
Maximální vyhoření paliva	60 MWd kg^{-1}

Chlazení reaktoru

Počet chladicích smyček	4
Pracovní tlak	15,7 MPa
Teplota chladiva na vstupu do aktivní zóny	290 °C
Teplota chladiva na výstupu z aktivní zóny	320 °C
Průtok chladiva reaktorem	$84\ 600\ \mathrm{m^{3}\ h^{-1}}$
Parogenerátor	
---	------------------------------------
Počet na blok	4
Vstupní/výstupní teplota na primární straně	320/290 °C
Vstupní/výstupní teplota na sekundární straně	220/278,5 °C
Tlak	6,3 MPa
Množství vyrobené páry	1470 t h^{-1}
Objem primární/sekundární strany	21/66 m ³
Průměr tělesa parogenerátoru	4,1 m
Maximální délka tělesa parogenerátoru	14,8 m
Hmotnost parogenerátoru	416 t
Chladicí věže	
Počet věží pro jeden výrobní blok	2
Celkový počet věží	4
Výška věže	154,8 m
Patní průměr	130,7 m
Průměr v koruně věže	82,6 m
Tloušťka pláště tahového komína	0,9–0,18 m
Celková plocha pláště	81 000 m ²
Hmotnost pláště	27 500 t
Objem sběrné nádrže	35 000 m ³
Výška nasávacího otvoru	10,7 m
Počet šikmých stojek	112
Zastavěná plocha	$13\ 700\ m^2$
Obestavěný prostor (objem věže)	1 069 700 m ³
Tepelný výkon jedné věže	1 100 MW
Průtok vody jednou věží	$17,2 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$
Průměrný odpar z jedné věže	$413 \mathrm{l} \mathrm{s}^{-1}$

Vzduchotechnický komín reaktorovny – dvojitý

Počet na blok	1
Množství vypouštěného vzduchu	90000–280000 $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$
Průměr vnitřního komína	1,6 m
Průměr vnějšího komína	3,0 m
Výška ústí komína	100 m
Materiál	ocel

Vzduchotechnicky komin pro budovu pomocnych provozu	
Počet na dva bloky	1
Množství vypouštěného vzduchu	$518800-750000 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$
Vnitřní průměr paty komína	11 m
Vnitřní průměr ústí komína	5,9 m
Výška ústí komína	100 m
Materiál	železobeton

Primární okruh je v podstatě uzavřená tlaková nádoba zaplněná chladivem, jehož objem se mění v závislosti na teplotních změnách v I.O. (Cencinger, 2003). Tlak v I.O. řídí pomocí systému kompenzace objemu, aby nedošlo k takovému poklesu tlaku chladiva který by vedl ke tvorbě páry v AZ a tím k přehřátí palivových elementů, nebo k takovému zvýšení tlaku chladiva, které by vedlo k narušení celistvosti primárního okruhu (Cencinger, 2003).

Řízení a regulace výkonu reaktoru se uskutečňuje vertikálním přemísťováním regulačních svazků v aktivní zóně a změnou koncentrace kyseliny borité v chladivu (EGP, 2004). Před nepřípustnými odchylkami základních parametrů je reaktor chráněn základním systémem ochran reaktoru, který účinkuje v případě, že není automatickou regulací zabezpečen normální provoz. K ochranným zařízením dále patří systémy havarijního chlazení aktivní zóny, které jsou určeny k zamezení roztavení aktivní zóny reaktoru při ztrátě chladiva (EGP, 2004).

1.11 Plynné radioaktivní odpady ETE

Plynné radioaktivní odpady jsou vzdušniny kontaminované radioaktivními plyny a aerosoly pohybující se v aktivních technologických okruzích nebo v místnostech kontrolovaného pásma jaderné elektrárny, jejichž předpokládaná aktivita nedovoluje volné vypuštění do vnější atmosféry. Koncepce jejich zneškodnění spočívá v odloučení radioaktivních látek z kontaminovaných vzdušnin filtrací na úroveň uvolnitelnou do životního prostředí.

Plynné výpusti jsou v Jaderné elektrárně Temelín uváděny do životního prostředí ze 3 ventilačních komínů (jeden na každém bloku a jeden u budovy pomocných aktivních provozů). Před vypouštěním do ventilačních komínů procházejí plynné odpady složitým systémem čištění, zbavují se vody, vodíku, aerosolů a jódu na aerosolových a jódových filtrech. Při těchto procesech se nezachycují vzácné plyny. Snížení jejich výpustí ventilačním komínem se dosahuje především jejich zdržením v hlavním výrobním bloku a na zpožďovací lince (INVESTPROJEKT, 2000).

Největším zdrojem plynných radioaktivních odpadů je odvzdušnění odplyňovače vody primárního okruhu. V jeho nádobě dochází k odvodu paroplynné směsi a tímto procesem se snižuje koncentrace volných plynů v chladivu I.O. Při odplyňování dochází k odstranění kyslíku, dusíku, amoniaku, vzácných plynů a při odstávce i vodíku z chladiva. Odvzdušněním je z I.O. odloučeno přibližně 50 % ¹⁴C (EGP, 2004). Pro přečištění této plynné směsi slouží speciální čisticí stanice technologického odvzdušnění (TS20). Uvolněný vodík je spalován v systému spalování vodíku.

Odvzdušnění aktivních technologických zařízení a odpary z neorganizovaných úniků do místností KP jsou přečišťovány vzduchotechnickými systémy. Tyto systémy jsou vybaveny filtračními stanicemi pro odstranění radioaktivních aerosolů a isotopů jódu včetně jeho organických sloučenin. Před vysoce účinnými aerosolovými filtry jsou osazeny aerosolové předfiltry snižující jejich prachové zatížení a prodlužující jejich životnost. Účinnost předfiltru pro filtraci aerosolů je 30 %. Účinnost absolutního filtru pro filtraci radioaktivních aerosolů je 99,95 % (Pechová, 2002; EGP, 2004).

Jodové filtry slouží pro záchyt jodu a jeho sloučenin. Sorbent použitý k plnění sorpčních elementů jódového filtru má účinnost pro methyljodid (při 30°C, 95 % r.v.) 99,5 % (Pechová, 2002).

Filtrace vzduchu z prostorů ochranné obálky bloku – kontejnmentu se provádí na základě požadavku radiační kontroly, který je odezvou na výsledky monitorování radiační situace. V případě, že není nutno vzduch vypouštěný do atmosféry filtrovat, je využíváno obtoku filtrů. Zajištění vnitřní a vnější bezpečnosti z hlediska úniku aktivity přes ochrannou obálku je za provozu realizováno vytvářením tlaku vzduchu v obálce na nižší tlakové úrovni než je tlak vně obálky. Podtlak 200 Pa zajišťuje, že z obálky za normálního provozu nemůže nekontrolovaně uniknout do okolí žádná vzdušnina (Pechová, 2002).

Vzhledem k tomu, že radionuklidy vznikající v šachtě reaktoru jsou v plynné formě, neuvažuje se s jejich záchytem na filtrech vzduchotechnických systémů odvětrávajících kontejnment, pouze s jejich zdržením a naředěním vzdušninami kontejnmentu. Dále se předpokládá, že cca 90 % neorganizovaných úniků se tvoří v hlavních výrobních blocích, zbytek cca 10 % v budově pomocných aktivních provozů (EGP, 2004).

Čistící stanice technologického odvzdušnění (zpožďovací linka aktivních vzácných plynů) slouží pro kontinuální čištění plynných médií odváděných ze systému spalování vodíku a aparátů pracujících s vodou primárního okruhu při provozu bloku. Čištění se provádí filtrací, kondenzací a sorpcí vzácných plynů na filtrech s náplní aktivního uhlí, s konečným efektem snížení jejich koncentrace před vypuštěním do komína (EGP, 2004). Aerosoly částečně kondenzují v chladičích řazených za sebou a částečně jsou zachytávány na filtrech s náplní ze skelných vláken. Plynné zdroje jsou kontinuálně syceny dusíkem pro zajištění koncentrace vodíku pod hranicí výbušnosti.

Stanice čištění technologického odvzdušnění je tvořena zeolitovými filtry na kterých dochází k záchytu zbytků aerosolů, jódu a zbytků vlhkosti. Přítomnost vodních par by snižovala účinnost následujícího záchytu vzácných plynů na aktivním uhlí systému čistící stanice technologického odvzdušnění. Z aktivního plynu je ochlazením technickou vodou a vodou od centrální chladicí jednotky vysrážena část vlhkosti, samočisticí filtr zbavuje plyny aerosolů a dosoušení zajišťuje zeolitový filtr (EGP, 2004).

Adsorbér se skládá se ze čtyř filtračních kolon, zapojených za sebou a zavezených aktivním uhlím, plnícím funkci zachycování aktivních vzácných plynů ze vzdušnin technologických odvzdušnění. Použité aktivní uhlí aktivované vodní parou obsahuje přídavek dřevného dehtu a kyseliny fosforečné (EGP, 2004). Schéma čistící stanice je graficky znázorněno na. obr. 1.5.

Systém je tvořen třemi shodnými čistícími linkami, z nichž jedna pracuje v základním režimu, jedna pracuje v pomocném režimu a třetí linka tvoří rezervu (tzv. "vymírá") (EGP, 2004). Vlastní zdroje čištěného technologického odvzdušnění jsou rozděleny. Na linku v základním režimu jsou vedeny vzdušniny ze systému spalování vodíku, zbývající zdroje (odplynění nádrží s aktivními médii) jsou čištěny na

lince v pomocném režimu. Průtočné množství čištěné plynné směsi na jednotlivých linkách se mění v závislosti na provozovaném režimu bloku. Přečištěná plynná směs je vedena do ventilačního komína a vysrážená voda ze směsi plynů je zavedena do speciální kanalizace (EGP, 2004).



Obr. 1.5 TS 20 – čistící stanice technologického odvzdušnění (Hlaváčová, 2003).

Průměrná doba zdržení vzácných plynů na uhlových filtrech činí 7–700 hodin. Minimální účinnost záchytu radionuklidů (s výjimkou tritia a vzácných plynů) činí přibližně 99,9 % a zdržení před vstupem do atmosféry 10 hodin (EGP, 2004; INVESTPROJEKT, 2000).

1.12 Možnosti snižování produkce a uvolňovaného množství ¹⁴C

Na vzniku ¹⁴C v palivu, konstrukčních materiálech aktivní zóny a chladivu se dominantním způsobem podílejí neutronové aktivační reakce ¹⁷O(n,)¹⁴C a ¹⁴N(n,p)¹⁴C s účinnými průřezy 0,24 barnů a 1,82 barnů.

Radiouhlík vzniklý v palivu je uvolňován až v závodech na přepracování vyhořelého paliva do odpadních plynů z rozpouštěcích nádrží. Výpočty bylo zjištěno, že aktivací

¹⁷O v palivu lehkovodních tlakových reaktorů je vyprodukováno přibližně 0,15 TBq ¹⁴C na $GW(e)^{-1} rok^{-1}$ (IAEA, 2004). Obsah kyslíku přítomného v palivu však nelze prakticky ovlivnit. Koncentrace 25 ppm dusíku v palivu přispívá k produkci ¹⁴C 0,55–0,74 TBq GW(e)⁻¹ rok⁻¹. Množství dusíku přítomného jako nečistoty v palivu může být kontrolováno v průběhu výroby paliva a může tak být sníženo i množství produkovaného ¹⁴C.

Materiály aktivní zóny obvykle rovněž obsahují určité množství dusíku. Obsah dusíku v antikorozní oceli se pohybuje v rozsahu 0,04–0,08 % (IAEA, 2004), v pokrytí paliva a materiálech aktivní zóny lehkovodních reaktorů v rozmezí 0,010–0,016 % pro nerezové oceli a \leq 0,08 % pro materiál Zircaloy – 4 (Davis, 1977). EGP (2004) uvádí rozpětí pro maximální obsah dusíku v použitých ocelích 0,05–0,015 %. Snižování obsahu dusíku v materiálech aktivní zóny musí být uváženo vůči výhodám spočívajícím v lepších mechanických vlastnostech materiálů a odolnosti proti korozi a dosaženému snížení kolektivních efektivních dávek.

Jednou z možností snižování tvorby ¹⁴C je též zlepšení řízení chemického režimu. Nejjednodušším způsobem je nepoužívat chemikálie, které mohou přispívat k produkci ¹⁴C během provozu reaktoru. Z důvodu omezování produkce ¹⁴C se proto v západních tlakovodních reaktorech provádí kontrola pH primárního chladiva dávkováním hydroxidu lithného (LiOH), namísto hydrazinu (N₂H₄). Tento hydroxid však může již v poměrně malých koncentracích způsobit výrazné zrychlení koroze (EGP, 2004).

Dalším zdrojem ¹⁴C je vstup vzduchu do systému chlazení během provozu reaktoru. Zlepšením systémového projektu, za účelem minimalizace možnosti přístupu vzduchu, lze rovněž docílit snížení produkce a množství uvolňovaného ¹⁴C (IAEA, 2004).

1.13 ¹⁴C v životním prostředí

Přirozený i antropogenní ¹⁴C je přítomen v životním prostředí převážně jako ¹⁴CO₂. Z troposféry přechází ¹⁴C do rezervoárů, především do oceánů a ostatních složek životního prostředí. Hlavním migračním mechanismem jsou výměnné procesy, přičemž průměrná střední doba pobytu ¹⁴C v troposféře je sedm let (Veselý et al., 1986).

Celkové zásoby uhlíku na Zemi je možno rozdělit na dvě nerovnoměrné části (Šivo, 2006):

- nevýměnný statický uhlíkový rezervoár obsahuje uhlík, který se téměř nezúčastňuje výměnných procesů. Sem patří uhlík organického původu (zejména fosilní paliva) a uhlík anorganického původu (karbonátové sedimenty),
- výměnný dynamický uhlíkový rezervoár obsahuje uhlík, který se účastní výměnných procesů, mezi jeho dílčími částmi: atmosférou, biosférou a hydrosférou.

V dynamickém uhlíkovém rezervoáru je soustředěno jen 0,17 % z celkového množství uhlíku na Zemi, přičemž 94,5 % z uhlíku ve výměnném cyklu se nachází v hlubinných vodách oceánů, 1,7 % v atmosféře a přibližně 1 % biosféře (Rublevskij et al., 1979; Usačev et al., 1977). Hlavní zásoby biologicky vázaného uhlíku se nacházejí v dřevinách. V povrchových vodách je uhlík soustředěn zejména v biomase mikroorganizmů a karbonátových uloženinách (Šivo, 2006).

V atmosféře jsou těkavé uhlovodíky a CO postupně oxidovány. Vzniklý CO₂ následně přechází do dalších složek životního prostředí.

Zelené rostliny absorbují ¹⁴CO₂ z atmosféry a proto aktivita ¹⁴C v biotě závisí na aktivitě ¹⁴C v ovzduší. V průběhu roku se mění aktivita atmosférického ¹⁴CO₂, aktivita ¹⁴C v rostlinách proto závisí také na době vegetační aktivity. ¹⁴C přechází s potravou do organizmů, kde je přítomen ve všech sloučeninách obsahujících uhlík – v proteinech, uhlovodících, tucích, enzymech i nukleových kyselinách (Veselý et al., 1986).

Denní změny koncentrace CO_2 v atmosféře jsou ovlivněny především stabilitou atmosféry, exhalací půdního CO_2 , fotosyntézou a respirací rostlin (Bosá, 2001). V letních měsících se objevují výraznější změny, s kulminací na konci noci, kdy je potlačeno vertikální promíchávání přízemní vrstvy atmosféry a respirace rostlin je intenzivní. Po východu slunce klesá koncentrace následkem vertikálního promíchávání v přízemní vrstvě atmosféry a fotosyntetickou asimilací CO_2 rostlinami (Bosá, 2001).

Obvykle se nejnižší koncentrace CO_2 v průběhu dne objeví v případě slunečného dne a bezvětří. Zimní měsíce se vyznačují nevýraznou variací denní vlny, která je způsobena tím, že v zimních měsících nedochází v průběhu dne k výraznějšímu

promíchávání v přízemní vrstvě atmosféry a rovněž fotosyntéza rostlin je potlačena. Sezónní variace koncentrací CO₂ vykazují letní minimum, které nastává obvykle v červenci (Haszpra, 1995).

1.14 Radiotoxicita ¹⁴C

Radiotoxicita je úměrná poločasu přeměny a energii záření, metabolismu prvku, rychlosti jeho vylučování z organizmu a závisí na radiologické charakteristice sloučeniny, případně i na její molekulové struktuře, je-li současně i chemicky toxická. Obecně platí, že radionuklid je tím nebezpečnější, čím selektivnější je jeho ukládání v určité části organizmu a čím obtížnější je jeho eliminace.

Uhlík tvoří základ všech organických sloučenin, tedy i živých organizmů. V molekulách bílkovin se nachází průměrně okolo 52 % uhlíku, v molekulách DNA a RNA okolo 37 % (Šivo, 2006).

Radionuklid ¹⁴C má jako isotop uhlíku přibližně stejnou aktivitu v atmosférickém ¹⁴CO₂ i ve všech živých organismech. Malé rozdíly jsou způsobeny sezónními změnami aktivit atmosférického ¹⁴CO₂, obdobím nárůstu biomasy rostlin (u jednotlivých druhů se liší) a složením stravy živočichů. Rovnovážná aktivita ¹⁴C bez antropogenního vlivu činí přibližně 0,226 Bq ¹⁴C na gram uhlíkové isotopické směsi, tj. 0 promile Δ^{14} C, případně 100 % pMC (Stuiver & Polach, 1977). V současnosti odpovídá aktivita ¹⁴C v přírodě přibližně 0,240 Bq g⁻¹ uhlíkové isotopické směsi se stabilním (lineárním) meziročním poklesem způsobeným pravděpodobně zejména ředěním od vzrůstajícího spalování fosilních paliv (Levin & Kroner, 2004).

¹⁴C vstupuje do organizmu dvěma cestami. Prvou z nich je příjem zažívacím traktem (ingesce). Touto formou postupuje ve formě složitých organických sloučenin rostlinného a živočišného původu. Cesta ingesce je hlavním zdrojem příjmu ¹⁴C. Člověk denně zkonzumuje potravu v množství, které obsahuje přibližně 300 g uhlíku (UNSCEAR, 2000; Šivo, 2006; WHO, 1983), který je touto cestou prakticky kompletně absorbován (WHO, 1983). Příjem uhlíku cestou inhalace představuje pouze asi 3 g d⁻¹ a z tohoto množství je v těle zadrženo jen asi 1 % (UNSCEAR, 1977). Příjem ¹⁴C vdechnutím je významný jen v případě vysokých aktivit ¹⁴C ve formě chemických

sloučenin, které z plic dobře pronikají do krve, jako jsou CO_2 , CO a uhlovodíky (Šivo, 2006). Biologický poločas ¹⁴C je přibližně 40 dní.

Radiouhlík se také účastní výměnných procesů spolu s atomy stabilního uhlíku a proniká tak do všech orgánů a tkání lidského organizmu. Aktivity ¹⁴C se proto v lidském těle poměrně rychle vyrovnávají a současné dozimetrické modely proto převážně při výpočtech vycházejí ze specifické aktivity (UNSCEAR, 2000).

Průměrný obsah uhlíku v lidském organizmu je asi 23 hmotnostních procent (UNSCEAR 2000), z tohoto množství se zastoupení uhlíku v jednotlivých částech těla pohybuje v rozsahu od 9 % v pohlavních žlázách a 10 % v plicích až po 41% v červené kostní dřeni a 67 % v tukové tkáni (ICRP, 1975; WHO, 1983).

V organizmu má radionuklid ¹⁴C dvojí účinek (Šivo, 2006):

- radiační účinek částic beta a jader dusíku vznikajících rozpadem ¹⁴C,
- účinek změn chemického složení molekul, vyvolaných změnou atomů uhlíku na atomy dusíku.

Radiační účinky ionizujícího záření v organizmu závisí na velikosti absorbované dávky a jakostního činitele daného druhu záření. Podle současných představ jsou genetické mutace výsledkem radiačně-chemických modifikací, nebo ztrát dusíkových vazeb DNA s potenciálním narušením genetického kódu.

Při objasnění mechanismu účinku ionizujícího záření obvykle rozlišujeme přímý a nepřímý účinek ionizujícího záření (obr. 1.6).

Přímý účinek se vysvětluje přímou absorpcí záření v kritických, biologicky důležitých molekulách, jejich štěpením, ionizací a vznikem volných radikálů. Důsledkem zásahu genetického materiálu je vznik mutací.

Nepřímé účinky ionizujícího záření jsou způsobeny poškozením kritických buněčných struktur působením radikálů a reaktivních produktů vzniklých ionizací a disociací především molekul vody. Volné radikály jsou chemicky velmi reaktivní a mohou štěpit vazby mezi dvěma atomy uhlíku nebo atomy uhlíku a dusíku. Reakce volných radikálů s genetickým materiálem mohou vést ke vzniku mutací.



Obr. 1.6 Mechanismus přímého a nepřímého účinku ionizujícího záření (Ullman, 2002).

Výsledné poškození buňky ionizujícím zářením je kombinací přímého a nepřímého účinku a působení reparačních mechanismů. Z hlediska konečného efektu není podstatné, zda je kritická biomolekula poškozená přímým, nebo nepřímým účinkem ionizujícího záření.

Atomy ¹⁴C, zabudované do molekul, které nesou genetický kód, mohou při radioaktivním rozpadu vyvolat nežádoucí mutace nejen svým zářením beta, ale i v důsledku transmutace atomu uhlíku na atom dusíku. V důsledku přeměny ¹⁴C na ¹⁴N dochází ke změně chemického složení příslušné molekuly DNA a RNA s pravděpodobnými genetickými důsledky.

Při změně ¹⁴C na stabilní dusík jsou charakterizovány transmutace DNA především lokálními změnami jejich chemického složení. Pravděpodobnost změn, způsobených částicemi beta emitovanými při přeměně ¹⁴C je malá. Energie zpětného nárazu při přeměně beta nestačí obvykle na rozbití chemických vazeb a vzniklé jádro dusíku zůstane součástí molekuly DNA na místě původního atomu uhlíku (Šivo, 2006).

Údaje o radiotoxicitě jednotlivých forem 14 C je uvedena ve vyhlášce 307/2002 Sb., v platném znění.

Absorpce v trávicím ústrojí je vyjádřena koeficientem f_{I_1} který v modelových výpočtech charakterizuje frakci, která přechází v trávicím ústrojí do tělesných tekutin. Konversní faktory (h_{inh} , h_{ing}) slouží k přepočtu příjmu radionuklidů příslušnou cestou na úvazek efektivní dávky.

Konversní faktor h_{ing} pro příjem požitím u jednotlivců z obyvatelstva (dospělí) ¹⁴C: 5,80 · 10⁻¹⁰ Sv Bq⁻¹; $f_I = 1$

Konversní faktory h_{inh} pro příjem vdechnutím radioaktivních výparů (dospělí)

jako výpary $^{14}\mathrm{C}:~5,8\cdot10^{-10}~\mathrm{Sv}~\mathrm{Bq}^{-1}$

jako ¹⁴CO₂: $6,2 \cdot 10^{-12}$ Sv Bq⁻¹

jako ¹⁴CO: $8,0 \cdot 10^{-13}$ Sv Bq⁻¹

Prakticky představuje nejvíce toxickou formou z uvedených ¹⁴CO₂. Údaj pro metan není ve vyhlášce uveden. Publikace ICRP 72 (ICRP, 1996) uvádí pro inhalaci ¹⁴CH₄ hodnotu konversního faktoru $2,9 \cdot 10^{-12}$ Sv Bq⁻¹.

1.15 Dozimetrické modely pro výpočet dávkové zátěže od příjmu ¹⁴C

Dávka z lokálního a regionálního ozáření od uvolňovaného do atmosféry představuje pouze malý podíl (řádově jednotky procent) z celkového přijatého úvazku dávky (UNSCEAR, 2000; WHO, 1983). Při uvolnění radiouhlíku z místních zdrojů jsou lokální (190 man Sv PBq⁻¹) a regionální (80 man Sv PBq⁻¹) dávkové zátěže od plynných výpustí menší nežli zátěž globální (270 man Sv PBq⁻¹). Hlavní dávková zátěž vyplývá z globálního rozptýlení ¹⁴C a jeho dlouhodobého začlenění do koloběhu uhlíku.

Jedním z možných přístupů pro odhad dávky z ¹⁴C uvolňovaného do ovzduší je metoda založená na specifické aktivitě (specific aktivity approach) (UNSCEAR, 2000). Při použití tohoto postupu se vychází z předpokladu, že specifická aktivita (aktivita na gram uhlíku) ¹⁴C přijatá ingescí je stejná jako specifická aktivita ¹⁴CO₂ v ovzduší v uvažované lokalitě. Dávka pak může být určena na základě znalosti relativního zastoupení kontaminovaných potravin ve stravě (WHO, 1983). Metoda vyžaduje použití mikrometeorologických modelů pro kvantitativní určení rozptylu ¹⁴C z místa uvolňování do uvažované oblasti. (WHO, 1983). Při použití metody založené na specifické aktivitě pro odhad lokálního a regionálního kolektivního dávkového úvazku se uvažuje, že vypouštěný ¹⁴C je ve formě ¹⁴CO₂ a koncentrace uhlíku v atmosféře je 0,18 g m⁻³ (Titley et al., 1995; UNSCEAR, 2000). Rychlost příjmu uhlíku činí 300 g d⁻¹ pro muže a 210 g d⁻¹ pro ženy, průměrovaná rychlost příjmu ingescí činí 93 kg rok⁻¹ (UNSCEAR, 2000). Dávka na jednotkový příjem ¹⁴C z ingesce je 5,8 \cdot 10⁻¹⁰ Sv Bq⁻¹ (SÚJB, 2002; ICRP, 1996; UNSCEAR, 2000).

Z hlediska krátkodobého (jednorázového) uvolňování ¹⁴C jsou dávky způsobeny téměř výhradně cestou ingesce konzumací potravin pocházejících ze sklizně v roce, kdy došlo k uvolnění ¹⁴C. Malé množství z ¹⁴C pocházejícího z výpustí může být deponováno v půdě a následně znovu uvolněno a asimilováno rostlinstvem, avšak koncentrace ¹⁴C budou v takovém případě velmi nízké a dávky obdržené v důsledku konzumace těchto rostlin budou nevýznamné ve srovnání s dávkami obdrženými v roce, kdy došlo k výpusti (UNSCEAR, 2000).

Modely pro odhad globální dávky obdržené od ¹⁴C uvažují radiouhlík pouze ve formě ¹⁴CO₂, neboť pouze tato forma může vstupovat do potravního řetězce (UNSCEAR, 2000). Forma ¹⁴CO₂ představuje jediný přímý příspěvek k dávce způsobené ingescí a tvoří 99 % z celkové dávky od ¹⁴C (UNSCEAR, 2000). V případě že je v emisích přítomen ¹⁴C rovněž ve formě uhlovodíků, vede předpoklad, že všechen radiouhlík je uvolňován ve formě ¹⁴CO₂ k určitému nadhodnocování dávek. Nicméně je nutno brát v úvahu fakt, že organické (uhlovodíkové) formy ¹⁴C jsou po rozptýlení v širším regionálním a globálním měřítku postupně v atmosféře oxidovány na formu ¹⁴CO₂ (UNSCEAR, 2000; Eisma et al., 1995).

2 CÍLE PRÁCE A HYPOTÉZY

Diplomová práce měla tyto cíle:

- 1. Analyzovat časové změny vypouštěného množství ¹⁴C do ovzduší.
- Ověřit souvislost množství uvolňovaného ¹⁴C s výkonovými hladinami reaktorů (po spuštění HVB1, HVB2, odstávky).
- 3. Ověřit souvislost s dalšími faktory, které mohou ovlivnit míru uvolňování ¹⁴C do ovzduší (koncentrace amoniakálního dusíku NH₄ v chladivu primárního okruhu).
- 4. Posoudit vztah mezi uvolňovanými chemickými formami radiouhlíku a dávkovou zátěží populace v okolí ETE od uvolňovaných radionuklidů.

Ověřované hypotézy:

- 1. Množství uvolňovaného ¹⁴C z ETE závisí pouze na výkonových stavech reaktorů.
- 2. Dávková zátěž od vypouštěného ¹⁴C nezávisí na jeho chemických formách.

3 METODIKA

3.1 Měření aktivit ¹⁴C v plynných výpustech ETE

Plynné výpusti radionuklidů jsou do životního prostředí uvolňovány především ventilačními komíny obou hlavních výrobních bloků ETE a ventilačním komínem budovy aktivních pomocných provozů. Ventilační komíny na HVB jsou dvoudříkové, tj. jsou soustředné a dělí se na vnitřní a vnější. Výpusti z těchto komínů závisí na provozních režimech bloků, vnější dříky komínů jsou provozovány pouze v obdobích odstávek jednotlivých bloků, ventilační komín BAPP je jednodříkový a je provozován nepřetržitě. Vzorky pro stanovení objemové aktivity chemických forem ¹⁴C v plynných výpustech se odebírají z vnitřních komínů HVB a z ventilačního komína BAPP za všech provozních režimů bloku. Z vnějších komínů HVB se vzorky ¹⁴C v souladu se schváleným programem monitorování výpustí z ETE (ČEZ, 2005) odebírají z výše uvedeného důvodu pouze při odstávkách. Od počátku května 2004 je perioda laboratorního měření kontinuálně odebíraného (kumulovaného) vzorku jeden týden.

Objemová aktivita ¹⁴C v plynných výpustech z ventilačních komínů HVB a BAPP se stanovuje cestou karbonátového srážení a měření kapalinovou scintilační spektrometrií. Pro odběr/kumulaci vzorků jsou používány vzorkovnice s náplní 3M roztoku NaOH (sorbent CO₂). Jedna větev slouží pro záchyt formy ¹⁴CO₂. Do druhé je vzorek vzduchu přiváděn přes spalovací katalyzátor, zde jsou spalitelné formy (zejména ¹⁴C_xH_y, ve velmi malé míře i ¹⁴CO) převedeny na ¹⁴CO₂, který je jímán. V této větvi/trase je proto stanoven veškerý ¹⁴C, bez rozlišení chemických forem (tzv. suma forem ¹⁴C, příp. ¹⁴C_{sum}).

Karbonáty (uhličitany) vzniklé průchodem oxidu uhličitého hydroxidem sodným se vysrážejí chloridem barnatým. Suspenze vzniklého uhličitanu barnatého s vodou je homogenizována s kapalným scintilátorem a měřena v kapalinovým scintilačním spektrometrem TriCarb 3170.

Uhlík ¹⁴C při své přeměně emituje záření beta s maximální energií 156 keV. Protože toto záření má malý dosah, je při měření využíváno kapalných scintilátorů, které se smísí s měřeným vzorkem. V této směsi pak dochází ke konverzi kinetické energie emitovaných beta částic ¹⁴C na fotonové záření ve viditelné oblasti. Jednotlivé scintilace (světelné záblesky) jsou registrovány dvěma fotonásobiči a následná elektronika vyhodnocuje koincidenční impulsy v odpovídajícím energetickém intervalu. Četnost impulsů je úměrná aktivitě ¹⁴C v měřeném vzorku.

K měření se používá kalibrovaný a metrologicky ověřený kapalinový scintilační spektrometr záření beta TriCarb 3170 (obr. A. 2), jehož součástí je elektronická jednotka, která provádí potřebná zpracování impulsů z fotonásobičů.

Nejmenší významná aktivita se stanovuje z měření pozaďového vzorku (Currie, 1995) a odpovídá významnosti chyby pozorování prvního druhu přibližně 5 %.

Nejistota se stanovuje jako kombinovaná nejistota stanovení na úrovni pravděpodobnosti přibližně 68 %, která byla vypočtena na základě dílčích příspěvků daných měřením vzorku, slepého vzorku, kalibrací a dále pak z odhadů dílčích příspěvků daných zejména dávkováním, geometrií měřeného vzorku, opravou na vliv zhášení a stabilitou scintilační směsi (Currie, 1995). Výpočet kombinované nejistoty se provádí podle zákona šíření (propagace) chyb. V nejjednodušším případě, pokud všechny zdroje nejistot působí aditivně a nejsou korelovány je kombinovaná standardní nejistota stanovení vypočtena jako druhá odmocnina součtu druhých mocnin (geometrický součet) jednotlivých složek nejistoty (EURACHEM, 1999). Rozšířená nejistota stanovení se vypočítá z kombinované standardní nejistoty vynásobením koeficientem rozšíření, který je pro cca 95 % interval spolehlivosti roven 2. Relativní nejistotou stanovení se rozumí nejistota stanovované veličiny dělená odhadem hodnoty této veličiny.

3.2 Sběr a zpracování dat

Ke splnění cílů práce a ověření stanovených hypotéz byly statisticky zpracovány a analyzovány údaje o pozorovaných objemových aktivitách chemických forem ¹⁴C v plynných výpustech ETE (s rozlišením na ¹⁴CO₂ a sumu forem ¹⁴C). Rovněž byly

zpracovány další parametry o nichž bylo předpokládáno, že mohou mít vliv na množství uvolňovaného ¹⁴C.

Objemové aktivity ¹⁴C ve ventilačních komínech HVB1, HVB2 a BAPP byly převzaty z primárních záznamů Laboratoře radiační kontroly okolí v Českých Budějovicích, ČEZ, a. s. a ze zpráv o výsledcích monitorování výpustí a radiační situaci v okolí Jaderné elektrárny Temelín (ČEZ, a. s., 2001–2006). Údaje o výkonových hladinách a koncentraci amoniaku v chladivu primárního okruhu HVB1 a HVB2 byly získány z programového modulu Graf informačního systému CHEMIS. Pokud bylo v jednotlivých dnech pro daný parametr uvedeno více výsledků měření, byla pro další zpracování použita maximální hodnota v daném dnu pro výkon reaktoru (1,2YC010: Výkon-p [%]) a průměrná hodnota pro koncentraci amonných iontů (1,2YC010: NH4 [mg/l]).

Aktivita vypuštěných forem ¹⁴C je počítána jako součin výsledků stanovení objemové aktivity forem ¹⁴C v odebraném vzorku a objemu vzduchu vypouštěného za příslušné odběrové období. Aktivita organické (spalitelné) formy byla vypočtena z výsledků stanovení jako rozdíl sumy forem a anorganické formy (¹⁴CO₂).

Výsledky stanovení ¹⁴C byly převedeny na spojité pozorování rozpočítáním podle intervalu délky odběru vzorku do časového rozpětí frekvence odběru vzorku, tj. u intervalů delších než 1 den bylo provedeno rozpočítání na jednotlivé dny. Takto získaný parametr je v práci označován jako rychlost uvolňování (GBq den⁻¹).

Ke statistickému zpracování byly použity pouze výsledky stanovení z vnitřních komínů HVB, které se na vypouštění ¹⁴C podílejí dominantně a odběry jsou proto provozovány nepřetržitě.

Při zpracování dat pro korelační analýzu bylo nutné se nejprve vypořádat s problémem neúplných dat zapříčiněným rozdílným intervalem odběru a měření jednotlivých parametrů. Jako nejbezpečnější přístup, byť vede k částečné ztrátě informace, byla zvolena metoda vyloučení neúplných párů (*pairwise deletion*). Jiným způsobem řešení jsou doplňovací (*imputation*) metody (Dohnal, 1999b). Častý způsob dopočítání chybějících hodnot je metoda lineární interpolace, při níž jsou chybějící hodnoty nahrazeny hodnotou interpolovanou z nejblíže vyšší a nejblíže nižší

nechybějící hodnoty. Chybějícím hodnotám, které nenásleduje žádná hodnota je přiřazena nejbližší nechybějící hodnota. Při analýze doplňovaných dat statistickými testy však dochází ke zkreslení informace o skutečném počtu stupňů volnosti (počtu nezávislých pozorování v datech) a odhady hladiny významnosti pak nejsou zcela přesné (jsou příliš optimistické) (Lepš & Šmilauer, 2000).

Meze významnosti stanovení objemové aktivity forem ¹⁴C byly vypočteny ze vztahu (ČSN 75 7600):

$$A_{NV} = u \cdot \frac{\sqrt{N_{p} \left(1 + \frac{t_{p}}{t_{v}}\right)}}{\eta \cdot t_{p} \cdot V \cdot R}$$
(1.8)

kde A_{NV} je nejmenší významná objemová aktivita (Bq m³), *u* kvantil normálního rozdělení pro zvolenou významnost chyby pozorování prvního druhu (pro $\alpha = \beta = 0,05$ u = 1,645), N_p počet impulsů pozadí za celkovou dobu měření slepého vzorku, t_p celková doba měření slepého vzorku (s), t_v celková doba měření vzorku (s), η účinnost měření, *V* objem vzduchu odebraný vzorkovačem (m³), *R* chemický výtěžek (výtěžnost přípravy sraženiny).

V případech, že se změřená hodnota nachází pod mezí významnosti metody stanovení, nahrazuje se pro další zpracování takový údaj hodnotou jedné poloviny uvedené meze významnosti (je zaveden předpoklad rovnoměrného rozdělení hodnot v oblasti pod mezí významnosti). Tím mohou být získané výsledky nadhodnoceny, vyjadřují však vyšší míru bezpečnosti než v případě, že by byly považovány za nulové.

Data byla zpracována převážně s využitím MS Excel 2003. Statistická analýza byla v některých případech provedena pomocí software KyPlot (Yoshioka, 2002) a PAST (Hammer et al., 2001)

S ohledem na rozsah zpracovávaných dat není jejich tabulkový přehled uveden obvyklým způsobem v příloze práce. Všechna použitá data, včetně způsobu jejich zpracování v prostředí tabulkového editoru MS Excel jsou obsažena v přiloženém CD.

3.3 Statistická analýza a interpretace výsledků

Deskriptivní statistické metody se používají k popisu získaných dat, aniž by se ze závěrů formulovaly a posléze ověřovaly nějaké hypotézy nebo se výsledky nějakým způsobem zevšeobecňovaly (Hendl & Kubánková, 1986).

Výběrové charakteristiky souborů výsledků jsou zpracovány do tabulek. V tabulkách jsou uvedeny parametrické i neparametrické charakteristiky souborů. Základní statistické ukazatele, používané k popisu polohy, jsou aritmetický průměr, medián a kvantily. Aritmetický průměr je validní při normálním rozložení dat, robustní medián jako střední hodnota souboru předpoklad normálního rozložení nevyžaduje. Kvantily lze do určité míry považovat za ukazatele polohy (medián je 50% kvantil), ale také ukazatele rozptylu (dolní a horní kvartil). Jsou uvedeny hodnoty 10% a 90% výběrových kvantilů. Přehled o rozložení dat doplňují nejmenší a nejvyšší hodnota souboru (x_{min}, x_{max}) a rozsah souboru *n*.

Pomocí měr variability se popisuje rozptýlení hodnot kolem střední hodnoty (aritmetického průměru). Jako míry rozptylu jsou v práci uváděny směrodatná odchylka, relativní směrodatná odchylka (variační koeficient), mezikvartilové rozpětí (interval mezi dolním, tj. 25%, a horním, tj. 75% kvartilem) a rezistentní odhad směrodatné odchylky z mezikvartilového rozpětí (Hendl, 2004). Variační koeficient poskytuje informace o homogenitě souboru, hodnota větší než 0,50 indikuje nehomogenní soubor obsahující jedno nebo více odlehlých pozorování (Popelka, 2006).

Výběrovými charakteristikami statistického logaritmicko-normálního rozdělení jsou odhad geometrického průměru a odhad geometrické směrodatné odchylky (Dempír & Dohnal, 2005). Geometrický průměr je zároveň mediánem rozdělení, což znamená, že tato hodnota dělí soubor lognormálně rozdělených hodnot na dvě stejné části.

Šikmost a špičatost se používají pro podrobnější charakteristiku naměřených dat. Jsou to statistické charakteristiky umožňující posoudit, zda rozložení dat výběrového souboru odpovídá normálnímu (gaussovskému) rozložení. Za normální rozložení se považuje takové rozložení, u něhož se hodnota šikmosti i špičatosti blíží nule. Interpretace parametru špičatosti není často jednoznačná a řada autorů s ní nepracuje, není proto uváděna ani v této práci (Brož & Bezvoda, 2006).

Parametrické metody jsou statistické metody založené na zkoumání zevšeobecňujících statistických charakteristik souborů, takzvaných parametrů (průměrů, rozptylů aj.) rozdělení. Vycházejí zpravidla z předpokladu, že sledovaný parametr má normální rozdělení.

Neparametrické metody jsou statistické metody, které se netýkají parametrů rozdělení, ale jsou odvozeny z takzvaných statistických pořadových měr. Jsou početně jednoduché a použitelné pro popis různých typů rozdělení. V případě, že se jich použije pro analýzu souborů normálně rozdělených, dávají méně informací než parametrické metody (Fridecký & Kratochvíla, 2002).

Užití neparametrických charakteristik se týká zpracování údajů o aktivitách radionuklidů a obecně veličin, jejichž statistické rozdělení nebývá normální, ale spíše se blíží logaritmicko-normálnímu. To je obvykle z jedné strany cenzurováno (limitováno, ohraničeno) mezí stanovitelnosti použité metody a na straně druhé se mohou vyskytovat odlehlé hodnoty (outliers) dané většinou bodovým zatížením lokality či populace (tzv. nesystematické změny). V takovém případě popis výsledků aritmetickým průměrem není objektivní (je založen na předpokladu normálního rozdělení) a použití aritmetického průměru dává obvykle nadhodnocující výsledky. V zásadě je účelnější a výhodnější používat neparametrické výběrové charakteristiky typu medián a kvantil a vyhnout se často nereálným předpokladům o konkrétním statistickém rozdělení zpracovávaných hodnot (SZÚ, 2006).

Statistické rozdělení dat bylo zkoumáno pomocí pravděpodobnostních grafů. Graf je konstruován tak, že na vodorovné ose x jsou zaneseny pozorované hodnoty a na svislé ose y (pravděpodobnostní, kvantilové) jsou uvedena procenta pozorování menších než daná hodnota (relativní pořadí, pořádková pravděpodobnost) transformovaná do normovaného normálního rozdělení. Relativní pořadí je určeno vztahem i/(n + 1), kde i je pořadí hodnoty v setříděných datech. Tento způsob umožňuje vizuálně posoudit, zda data mají symetrické, unimodální (jednovrcholové) či vícemodální (vícevrcholové) statistické rozdělení a rovněž umožňuje určit odlehlé hodnoty. Jestliže se tvar závislosti

blíží přímce, je rozdělení dat souboru normální. Je-li graf ve tvaru lomené přímky, je soubor vícemodální. Převedeme li osu x na logaritmické měřítko, indikuje přímková závislost logaritmicko-normální rozdělení dat. Pro ověření předpokladu o rozdělení výběrů získaného z pravděpodobnostních grafů je v některých případech dále použit Shapiro-Wilkův test (Shapiro & Wilk, 1965; Royston, 1995).

Statistická hypotéza se vyslovuje jako předpoklad o vlastnostech zkoumaných dat. Rozlišuje se nulová hypotéza, kdy předpokládáme náhodné pravděpodobností rozložení ve zkoumaných datech a alternativní hypotéza, hypotéza kterou formulujeme pro situace, že nulová hypotéza neplatí. Pokud srovnáme skutečný stav s pravdivostí hypotézy, získáváme tzv. chybu I. a II. druhu. Chybu prvního druhu (odmítnutí nulové hypotézy, která ve skutečnosti platí) lze minimalizovat volbou nižší hladiny významnosti (místo 0,05 např. zvolíme 0,01), chybu druhého druhu (přijmutí nulové hypotézy, která ale ve skutečnosti neplatí) volbou vyšší hladiny významnosti nebo zvýšením počtu pozorovaných hodnot (Jabor et al., 2002).

Hladina (úroveň) významnosti chyby I. druhu (obvykle značená α) vyjadřuje pravděpodobnost, že bude mylně zamítnuta platná nulová hypotéza (pravděpodobnost mylného zamítnutí této hypotézy je α).

Dosažená (spočtená) hladina významnosti p value je pravděpodobnost zamítnutí nulové hypotézy za podmínky, že v populaci ve skutečnosti nulová hypotéza platí. Obvykle se p value porovnává s předem zvolenou hladinou významnosti α . Pokud je p value nižší než α , pak nulovou hypotézu o neexistenci diferencí (korelací) zamítáme a uvádíme, že hypotéza nebyla potvrzena (případně se přikláníme k alternativní hypotéze). O výsledku testu pak říkáme, že je statisticky významný. V opačném případě říkáme, že nulová hypotéza nebyla zamítnuta (nebyla nalezena dostatečná evidence pro zamítnutí nulové hypotézy).

V regresní analýze se odhaduje, jakým způsobem závisí hodnoty nebo střední hodnoty nějaké veličiny, která se nazývá vysvětlovanou proměnnou na jiné nebo několika jiných veličinách, které se nazývají vysvětlujícími proměnnými. Regrese popisuje vztah (závislost) dvou a více kvantitativních proměnných formou funkční závislosti (Duchoslav, 2005).

Jednoduchá lineární regrese popisuje přímkový vztah mezi závisle proměnnou veličinou (*y*) a jedinou nezávisle proměnnou veličinou (*x*). Rovnice jednoduché lineární regrese je ve tvaru y = ax + b, kde *a* je směrnice přímky (tangens úhlu) a *b* je úsek, který přímka vytíná na ose *y*. Při provádění regresních analýz jsou rozhodujícími kritérii posuzování hodnoty směrnice, úseku na ose *y*, směrodatné odchylky regrese a hodnota korelačního koeficientu, který vyjadřuje těsnost rozložení jednotlivých bodů kolem regresní přímky. Druhá mocnina korelačního koeficientu tzv. koeficient (index) determinace (rozsah <0;1>, popř. ×100 v % <0;100>) udává, jaký díl variability závisle proměnné je vysvětlen závislostí této veličiny na nezávisle proměnné. Čím vyšší je jeho hodnota, tím větší je úspěšnost regrese (vhodnost modelu). Protože zvolený model je zjednodušením reality, je vhodné podle principu parsimonie (jednoduchosti) volit model co nejjednodušší, který již vystihuje zkoumanou závislost. Pokud není významný rozdíl mezi determinačními koeficienty jednotlivých modelů (±2 %) (Popelka, 2006), je vhodné zvolit jednodušší model (např. přímka). Pouze pokud je rozdíl již významný, volí se komplikovanější model (např. polynom).

Z grafu závislosti usuzujeme, zda nejsou přítomny tzv. odlehlé resp. vlivné body. Odlehlý bod je takový, který leží mimo základní konfiguraci bodů v grafu. Bod, který je silně vychýlený ve směru pouze jedné ze souřadnic se zpravidla označuje jako odlehlý (outlier). Bod, který je vychýlený ve směru obou souřadnic se obvykle označuje jako extrém. Vlivné jsou takové body, jejichž odstraněním se podstatně mění poloha regresní přímky. Vlivné body mohou, ale nemusejí být odlehlými hodnotami, mohou mít značný vliv na regresní model a tím také na jeho predikční schopnost (Dohnal, 1999a, 2000).

Lineární korelační koeficient (r) je statistická charakteristika určující těsnost vztahu mezi dvěma párovými proměnnými x a y. Nabývá hodnot v intervalu -1 až +1. Při hodnotě r = 0 vztah mezi proměnnými neexistuje, při hodnotě r = +1 je lineární přímá úměra mezi daty, při hodnotě r = -1 je lineární nepřímá úměra mezi daty. Rozlišuje se parametrický způsob získání korelačního koeficientu (Pearsonův korelační koeficient) a neparametrický způsob (Spearmanův koeficient pořadové korelace). Spearmanova korelačního koeficientu se používá v případě přítomnosti vybočujících hodnot nebo nelineární závislosti, kdy je spolehlivější než klasický Pearsonův korelační koeficient. Pearsonův korelační koeficient je mírou lineární závislosti, Spearmanův mírou monotónní závislosti (Lepš, 2007). Hodnoty korelačních koeficientů a příslušné dosažené hladiny významnosti p je vždy třeba brát kriticky, neboť pro velký rozsah výběru může i prakticky nevýznamná korelace vycházet statisticky významná (Zvárová, 2002).

Za nevýznamnou se obvykle považuje korelace s r < 0,2, za dosti těsnou korelace s r > 0,8 (Menčík, 2003). Někteří autoři doporučují vypočítat korelační koeficient r ještě před proložením křivky lineární regresí a použít předpoklad lineární korelace jen v případě, když hodnota korelačního koeficientu dostatečně vysoká. V opačném případě se doporučuje transformace nelineárního vztahu na lineární pomocí některé z možných a vhodných transformací či použití polynomické regrese (Fridecký & Kratochvíla, 2002). Používat polynomy vyšších stupňů je však obecně velmi nevhodné, neboť popisují dobře pouze výběrová data (Popelka, 2006).

4 VÝSLEDKY

4.1 Tabulky základních statistických charakteristik HVB1, HVB2 a BAPP

V tabulkách 4.1 až 4.3 je uveden přehled napočtených základních statistických charakteristik jednotlivých souborů dat. Motivace výpočtů a interpretace jednotlivých charakteristik je uvedena v části 3.3.

	Výkon	Toky ¹⁴ C _{sum}	Toky ¹⁴ CO ₂	Toky ¹⁴ C _x H _y	NH_4^+
	(%)	(GBq den ⁻¹)	(GBq den ⁻¹)	$(GBq den^{-1})$	$(mg l^{-1})$
období	od 1.10.2001	od 31.10.2000	od 30.10.2000	od 30.10.2000	od 18.3.2001
	do 26.12.2006	do 26.12.2006	do 26.12.2006	do 26.12.2006	do 26.12.2006
počet	1913	182	182	182	860
minimum	0	5,27E-06	5,95E-06	6,82E-07	0,300
maximum	100	4,71	0,232	4,68	49,2
průměr	66,4	0,476	0,020	0,457	11,1
medián	97,0	0,445	0,009	0,422	10,8
geom. průměr	76,8	0,215	0,009	0,175	10,2
90% kvantil	100	0,933	0,042	0,925	15,6
10% kvantil	0	0,017	0,002	0,011	7,10
mezikvartil. rozpětí	100	0,601	0,017	0,603	4,54
směrodatná odchylka	44,3	0,470	0,030	0,465	4,06
rezistentní SD	74,1	0,445	0,012	0,447	3,36
variační koeficient	0,668	0,988	1,53	1,02	0,367
GSD	3,37	6,43	3,87	9,73	1,61
špičatost	-0,758	4,16	3,62	4,24	1,74

 Tab. 4.1
 Základní statistické charakteristiky parametrů pro vnitřní komín HVB1.

	Výkon (%)	Toky ${}^{14}C_{sum}$ (GBq den ⁻¹)	Toky ${}^{14}CO_2$ (GBq den ⁻¹)	Toky ${}^{14}C_xH_y$ (GBq den ⁻¹)	NH_4^+ (mg l ⁻¹)
období	od 1.1.2002	od 30.6.2002	od 30.6.2002	od 30.6.2002	od 16.4.2002
	do 26.12.2006	do 26.12.2006	do 26.12.2006	do 26.12.2006	do 26.12.2006
počet	1821	162	162	162	625
minimum	0	2,80E-04	0,001	3,45E-05	0,500
maximum	100	2,36	0,296	2,23	64,0
průměr	55,4	0,675	0,022	0,654	13,6
medián	84,0	0,615	0,009	0,606	12,6
geom. průměr	81,4	0,360	0,009	0,336	12,3
90% kvantil	100	1,35	0,059	1,29	21,2
10% kvantil	0	0,036	0,002	0,033	7,70
mezikvartil. rozpětí	100	0,699	0,015	0,714	6,10
směrodatná odchylka	46,4	0,492	0,038	0,478	6,12
rezistentní SD	74,1	0,518	0,011	0,529	4,52
variační koeficient	0,839	0,729	1,73	0,731	0,451
GSD	1,79	5,44	3,69	6,24	1,64
špičatost	-0,275	0,637	3,92	0,602	2,07

Tab. 4.2 Základní statistické charakteristiky parametrů pro vnitřní komín HVB2.

Tab. 4.3 Základní statistické charakteristiky parametrů pro vnitřní komín BAPP.

	Toky ¹⁴ C _{sum}	Toky ¹⁴ CO ₂
	(GBq den ⁻¹)	$(GBq den^{-1})$
období	od 30.12.2002	od 29.12.2003
	do 26.12.2006	do 26.12.2006
počet	140	139
minimum	1,02E-04	1,07E-04
maximum	0,315	0,180
průměr	0,017	0,017
medián	0,008	0,009
geom. průměr	0,008	0,009
90% kvantil	0,030	0,034
10% kvantil	0,003	0,003
mezikvartil. rozpětí	0,012	0,014
směrodatná odchylka	0,033	0,025
rezistentní SD	0,009	0,010
variační koeficient	1,99	1,47
GSD	3,25	3,05
špičatost	6,37	3,76

V následující tabulce (4.4) je uvedeno procentuální zastoupení forem ${}^{14}CO_2$ v jednotlivých letech a hodnoty celkových ročních výpustí sumy forem ${}^{14}C$, zvlášť pro každý reaktor a BAPP.

		Podíl			
	Roční výpusť	¹⁴ CO ₂ /suma	Roční výpusť	Podíl ¹⁴ CO ₂ /suma	Roční výpusť
Rok	$(GBq rok^{-1})$	(%)	$(GBq rok^{-1})$	(%)	$(GBq rok^{-1})$
2001	21,0	39	_	_	0,0007
2002	130	5,3	3,03	69,5	0,0216
2003	141	4,8	187	3,06	0,0196
2004	171	3,8	229	2,40	1,35
2005	179	5,0	227	2,76	3,64
2006	246	2,4	309	3,62	3,82

Tab. 4.4 Procentuální zastoupení ročních výpustí forem 14 C ve vnitřních komínech HVB1, HVB2 a BAPP v letech 2001–2006.

Z výsledků uvedených v tabulce 4.4 je vidět postupný pravidelný meziroční nárůst hodnot toků sumy forem 14 C.

U výpustí chemických forem ve ventilačním komínu BAPP se projevuje zásadní rozdíl oproti komínům výrobních bloků, anorganická forma (¹⁴CO₂) je zde dominantní. Rozdělení vypouštěných aktivit ¹⁴C_{sum} a ¹⁴CO₂ BAPP za období 2003–2006 bylo testováno na shodu pomocí Mannova-Whitneyova testu (Lepš, 1996; Hendl, 2004; Zvára, 1999). Rozdíl mezi oběma soubory nebyl prokázán ($U_{(139)} = 9278,5, p = 0,5692$).

4.2 Kumulativní rozdělení

Vizuální posouzení splnění předpokladů o rozdělení naměřených hodnot umožňuje pravděpodobnostní graf. Pro snadnější orientaci při čtení pravděpodobnostních grafů je v tabulce 4.5 uveden vztah mezi kvantily a kumulativním rozdělením.

Kvantil	Kumulativní rozdělení (%)	
3	99,87	
2	97,73	
1	84,13	
0	50	
-1	15,87	
-2	2,28	
-3	0,135	

Tab. 4.5 Vztah mezi kvantily normovaného normálního rozdělení a kumulativním rozdělením.

Data v grafech jsou proložena přímkou metodou nejmenších čtverců což usnadňuje posouzení splnění předpokladu o tvaru rozdělení.

Kumulativní rozdělení vypouštěných aktivit ¹⁴C_{sum} (suma forem) z komínů HVB1, HVB2 a BAPP v pravděpodobnostním grafu je uvedeno na obr. 4.1. Statistická rozdělení toků ¹⁴C (bez rozlišení forem) na HVB1 a HVB2 nejsou normální ani logaritmicko-normální, ale jsou vícemodální s rozsahem hodnot několik řádů. Důvodem jsou fluktuace uvolňovaných aktivit v důsledku změn režimů provozovaných bloků. Z grafu je patrná podobnost tvaru kumulativních rozdělení aktivit sumy forem ¹⁴C v HVB1 a HVB2. V případě toků ¹⁴C na BAPP jsou patrné v dolní části grafu odlehlé hodnoty, které znesnadňují rozhodnutí o tvaru rozdělení, které jinak poměrně dobře koresponduje s logaritmicko-normálním rozdělením.



Obr. 4.1 Kumulativní rozdělení toků ¹⁴C_{sum} HVB1 (n = 182), HVB2 (n = 162) a BAPP (n = 140) ETE za období od 30.10.2000 do 26.12.2006. Na svislé ose jsou zaneseny kvantily normovaného normálního rozdělení, na vodorovné ose jsou na logaritmické stupnici vynesena data setříděná podle pořadí. Pro data pocházející z logaritmicko-normálního rozdělení bez odlehlých hodnot má graf tvar přímky.

Statistické testování rozdílů toků ¹⁴C_{sum} HVB1 a HVB2 za celé období od zahájení sledování (2.10.2000 – HVB1, 31.5.2002 – HVB2) do 26.12.2006 bylo provedeno vzhledem k tvaru rozdělení hodnot neparametrickým dvouvýběrovým Wilcoxonovým testem. Pro výpočet byl použit ekvivalentní Mannův-Whitneyův test (Lepš, 1996; Hendl, 2004). Oba testy jsou analogií dvouvýběrového *t* testu, který se používá za předpokladu normálního rozdělení, kdy místo původních pozorování jsou použita jejich pořadí ve sdruženém výběru. Předpokládá se, že oba náhodné výběry jsou vzájemně nezávislé. Nulová hypotéza tvrdí, že rozdělení výběru jsou totožná (distribuční funkce jsou shodné). Za alternativní hypotézy shodnost distribučních funkcí neplatí. Výsledek testu udává vysoce statisticky významný rozdíl ($U_{182, 162} = 11095$, p = 7,48E-005). Mannův-Whitneyův test je zejména citlivý na posunutí distribučních funkcí. Pokud jím

testujeme nulovou hypotézu o shodě polohy (tedy o mediánu), musíme předpokládat, že se distribuce neliší tvarem (Lepš, 1996). Příčiny zjištěného rozdílu je možné hledat v úrovni technologie (kvalita a kapacita čisticích systémů, kvalita materiálů v primárním okruhu) a způsobu provozování (četnost odstávek, kvalita chemického režimu) bloku.

Dále bylo zkoumáno statistické rozdělení jednotlivých forem 14 C. Kumulativní rozdělení toků 14 CO₂ z komínů HVB1, HVB2 a BAPP je znázorněno v pravděpodobnostním grafu na obr. 4.2.



Obr. 4.2 Kumulativní rozdělení toků ¹⁴CO₂ HVB1 (n = 182), HVB2 (n = 162) a BAPP (n = 139) ETE za období od 30.10.2000 do 26.12.2006. Na svislé ose jsou zaneseny kvantily normovaného normálního rozdělení, na vodorovné ose jsou na logaritmické stupnici vynesena data setříděná podle pořadí. Pro data pocházející z logaritmicko-normálního rozdělení bez odlehlých hodnot má graf tvar přímky.

Z grafu je vidět, že tvary rozdělení toků ¹⁴CO₂ jsou přibližně shodné a přibližně splňují předpoklad logaritmicko-normálního (resp. unimodálního) rozdělení. Shapiro-Wilkův test udává statisticky nevýznamný výsledek pro HVB2 (W = 0.9844, p = 0.06621).

V dolní krajní poloze grafu je v případě HVB1 a BAPP patrná přítomnost odlehlých hodnot. Rozdělení jsou dosti široká a hodnoty se pohybují v rozmezí několika řádů.

Kumulativní rozdělení toků ${}^{14}C_xH_y$ v pravděpodobnostním grafu je uvedeno na obr. 4.3.



Obr. 4.3 Kumulativní rozdělení toků ¹⁴C_xH_y HVB1 (n = 182) a HVB2 (n = 162) ETE za období od 30.10.2000 do 26.12.2006. Na svislé ose jsou zaneseny kvantily normovaného normálního rozdělení, na vodorovné ose jsou na logaritmické stupnici vynesena data setříděná podle pořadí. Pro data pocházející z logaritmicko-normálního rozdělení bez odlehlých hodnot má graf tvar přímky.

Konfigurace bodů v grafu je velmi podobná grafu kumulativního rozdělení toků sumy forem ¹⁴C (obr. 4.1), bez "kontaminace" nízkými hodnotami ¹⁴CO₂. Data nepocházejí z jednoduchého homogenního rozdělení, ale spíše ze směsi dvou, nebo více homogenních podsouborů (jsou vícemodální).

Na obr. 4.4 a 4.5 jsou zobrazena kumulativní rozdělení výkonových hladin reaktorů HVB1 a HVB2.



Obr. 4.4 Kumulativní rozdělení výkonových hladin reaktoru HVB1 ETE za období od 1.10.2001 do 26.12.2006 (n = 1913). Na svislé ose jsou zaneseny kvantily normovaného normálního rozdělení, na vodorovné ose jsou na lineární stupnici (sledovaná data obsahují nulu) vynesena data setříděná podle pořadí. Pro data pocházející z normálního rozdělení má graf tvar přímky.



Obr. 4.5 Kumulativní rozdělení výkonových hladin reaktoru HVB2 ETE za období od 1.1.2002 do 26.12.2006 (n = 1821). Na svislé ose jsou zaneseny kvantily normovaného normálního rozdělení, na vodorovné ose jsou na lineární stupnici (sledovaná data obsahují nulu) vynesena data setříděná podle pořadí. Pro data pocházející z normálního rozdělení má graf tvar přímky.

Statistická rozdělení nejsou normální ani logaritmicko-normální, z grafů je zřejmá bimodalita těchto rozdělení.

4.3 Analýza časových řad

V dalším části byla použita metoda časových řad pro stanovení vývoje toků ¹⁴C ve sledovaném období. Ke grafickému znázornění trendu v datech bylo použito klouzavého průměru délky 5, který vyhlazuje série dat v grafu, takže je jednodušší určit trendy. Metoda klouzavých průměrů je založena na lineární kombinaci hodnot původní časové řady, v podstatě se jedná o vyrovnání řady polynomem určitého řádu (Řezanková et al., 2001). Význam délky (řádu) klouzavého průměru je takový, že čím je jeho délka větší, tím jsou křivky hladší, méně citlivé na lokální poruchy a zachycují

spíše globální dlouhodobý trend (hladší křivka). Menší délka zachycuje spíše lokální chování dat. Pro ověření, zda není v datech významný lineární trend je v grafu ještě zobrazena regresní přímka dosažená metodou nejmenších čtverců.

Pro statistické zhodnocení dlouhodobého monotónního (stále rostoucího popř. klesajícího) trendu v datech byl použit test založený na neparametrickém Spearmanově koeficientu korelace r_s . Nulovou hypotézu o nepřítomnosti trendu zamítáme, platí-li $|r_s| \sqrt{(n-1)} \ge z_{(\alpha/2)}$ (Zvára, 1999), kde *z* značí kvantil normovaného normálního rozdělení pro odpovídající hladinu významnosti. Výsledek testu je kvantitativně vyjádřen hodnotou Spearmanova korelalačního koeficientu a dosaženou hladinou významnosti *p* value. Test je asymptotický, jeho skutečná hladina spolehlivosti se deklarované limitně blíží s rostoucím rozsahem dat (Hendl, 2004). Výsledky jsou znázorněny na obr. 4.6 až 4.8.



Obr. 4.6 Trend vyhlazení, toky ¹⁴C_{sum} HVB1. Data nejsou zobrazena v celém rozsahu od zahájení měření, ale jsou omezena výběrem časového intervalu od 10.5.2004 do 26.12.2006 (n = 138), tak aby bylo možné lepší vzájemné porovnání a byl potlačen vliv rozdílného intervalu vzorkování v předešlém období. Údaj na horizontální ose odpovídá pořadí analýz vzorků od počátku zvoleného intervalu, na vertikální ose jsou uvedeny toky ¹⁴C bez rozlišení forem. Plná čára značí klouzavý průměr délky 5 který vyhlazuje kolísání dat a zřetelněji zobrazuje trend, přerušovanou čárou je vyznačena regresní přímka.

Grafické proložení toků ¹⁴C HVB1 neumožňuje v důsledku fluktuací odhadnout krátkodobý trend. Sklon regresní přímky naznačuje z dlouhodobého hlediska přítomnost mírně stoupajícího lineárního trendu. Výsledek testu nezávislosti založeného na Spearmanově koeficientu pořadové korelace dokládá přítomnost monotónního trendu průkazného na každé z běžně používaných hladin ($r_s = 0,2546, p = 0,0029$).



Obr. 4.7 Trend vyhlazení, toky ¹⁴C_{sum} HVB2. Data nejsou zobrazena v celém rozsahu od zahájení měření, ale jsou omezena výběrem časového intervalu od 10.5.2004 do 26.12.2006 (n = 138), tak aby bylo možné lepší vzájemné porovnání a byl potlačen vliv rozdílného intervalu vzorkování v předešlém období. Údaj na horizontální ose odpovídá pořadí analýz vzorků od počátku zvoleného intervalu, na vertikální ose jsou uvedeny toky ¹⁴C bez rozlišení forem. Plná čára značí klouzavý průměr délky 5 který vyhlazuje kolísání dat a zřetelněji zobrazuje trend, přerušovanou čárou je vyznačena regresní přímka.

Grafické proložení toků ¹⁴C HVB2 neumožňuje v důsledku fluktuací odhadnout krátkodobý trend. Sklon regresní přímky nenaznačuje přítomnost významného lineárního trendu (sklon přímky je potřeba hodnotit se zřetelem k měřítku použitému na svislé ose). Přítomnost monotónního trendu nebyla testem nezávislosti založeném na Spearmanově koeficientu pořadové korelace prokázána ($r_s = 0,1003, p = 0,2404$).



Obr. 4.8 Trend vyhlazení, toky ¹⁴C_{sum} BAPP. Data nejsou zobrazena v celém rozsahu od zahájení měření, ale jsou omezena výběrem časového intervalu od 10.5.2004 do 26.12.2006 (n = 138), tak aby bylo možné lepší vzájemné porovnání a byl potlačen vliv rozdílného intervalu vzorkování v předešlém období. Údaj na horizontální ose odpovídá pořadí analýz vzorků od počátku zvoleného intervalu, na vertikální ose jsou uvedeny toky ¹⁴C bez rozlišení forem. Plná čára značí klouzavý průměr délky 5 který vyhlazuje kolísání dat a zřetelněji zobrazuje trend, přerušovanou čárou je vyznačena regresní přímka.

Z grafického proložení toků ¹⁴C BAPP nelze v důsledku fluktuací odhadnout krátkodobý trend, oscilace hodnot taktéž neumožňují dobře odhadnout dlouhodobý trend vývoje toků ¹⁴C. Směrnice regresní přímky má záporné znaménko (a = -0,0001). Monotónní trend v datech statisticky je nevýznamný ($r_s = 0,0022$, p = 0,9791).

4.4 Rychlosti uvolňování chemických forem ¹⁴C a výkon reaktorů

Obrázek 4.9 prezentuje průběh rychlosti uvolňování jednotlivých forem ¹⁴C ve vnitřním komíně HVB1 po dnech a výkon reaktoru.



Obr. 4.9 Rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ a ¹⁴C_xH_y po dnech ve vnitřním komínu HVB1, porovnání s výkonem reaktoru. Na hlavní (levé) vertikální ose jsou zaznamenány rychlosti uvolňování jednotlivých forem ¹⁴C. Na vedlejší pořadnici jsou zanesena procenta nominálního tepelného výkonu reaktoru. Na časové horizontální ose jsou uvedeny dny. Čárkovanou světlejší čarou je značen průběh výkonu. Silnější plná čára značí ¹⁴CO₂, slabší plná čára ¹⁴C_xH_y. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.10.2001 do 26.12.2006.

Předpoklad prvního pohledu z grafu je, že rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ ve vnitřním komínu HVB1 kopírují s určitým časovým posunem a s výrazným snížením průběh rychlostí uvolňování organických forem ¹⁴C. Dobře patrný je spike (výron) aktivity především organické formy ¹⁴C v týdnu od 16.–23.1. 2006. Vypouštěné aktivity organických forem jsou cca o 1 řád vyšší než aktivity ¹⁴C ve formě CO₂. Z grafu je dále patrný jistý vliv odstávek na vypouštěné množství ¹⁴C. Při odstavení reaktoru nebo snížení výkonu dochází k omezení tvorby i rychlosti uvolňování forem ¹⁴C. Hodnoty mají zřetelný chod (postupný růst, nebo pokles) v souvislost s provozním režimem (výkon reaktoru, odstávka bloku).
Statistické vyhodnocení závislosti a síly vztahu mezi rychlostmi uvolňování forem ¹⁴C a výkonem reaktoru HVB1 bylo provedeno pomocí regresní a korelační analýzy. Výsledky byly vyjádřeny Spearmanovým pořadovým korelačním koeficientem r_s a rovnicí jednoduché lineární regrese metodou nejmenších čtverců. Výsledky jsou graficky znázorněny na obr. 4.10 a obr. 4.11.



Obr. 4.10 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ HVB1 na výkonu reaktoru. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.10.2001 do 26.12.2006 (n = 860). Na horizontální ose jsou uvedena procenta nominálního tepelného výkonu reaktoru, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴CO₂.

Míra monotónní závislosti mezi proměnnými (rychlost uvolňování ¹⁴CO₂ a výkon reaktoru HVB1) je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,2722, p = 1,13E-032$). Metodou nejmenších čtverců byly vypočteny parametry regresní rovnice ($y = 5E-0,5x + 0,0154, p = 0,0003, R^2 = 0,0069$). Pouze necelé 1 % variability ¹⁴CO₂ ve vnitřním komínu HVB1 je v regresním modelu vysvětleno závislostí této veličiny na výkonu reaktoru.



Obr. 4.11 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴C_xH_y HVB1 na výkonu reaktoru. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.10.2001 do 26.12.2006 (n = 860). Na horizontální ose jsou uvedena procenta nominálního tepelného výkonu reaktoru, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴C_xH_y.

Míra monotónní závislosti mezi rychlostí uvolňování ¹⁴C_xH_y a výkonem reaktoru HVB1 je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,5465$, p = 3,27E-126). Metoda nejmenších čtverců vede k odhadu parametrů regresní rovnice (y = 0,0044x + 0,1469, p = 7,4E-121, $R^2 = 0,2488$). Regresní přímka vysvětluje cca 25 % celkové variability ¹⁴C_xH_y ve vnitřním komínu HVB1.

V obou případech uvedených na obr. 4.10 a obr. 4.11 vychází hodnota pořadového korelačního koeficientu průkazná na všech běžně používaných hladinách významnosti, předpoklad prvního pohledu z grafů však je, že korelace je z praktického hlediska nevýrazná. Empirickou volbou nebyla nalezena přítomnost žádného zřejmého jednoduchého, stochastického vztahu mezi daty. Z grafů je patrná nehomogenita, která se projevuje jako shluky bodů pro subpopulace v oblasti nejnižších a nejvyšších hodnot. Poloha regresní přímky je ovlivněna touto nehomogenitou. Validita testu statistické

významnosti použitého modelu jednoduché lineární regrese (Fisherův-Snedecorův test významnosti regrese) je omezena nesplněním předpokladu normality závislé proměnné, který zaručuje oprávněnost použití kvantilů *F* rozdělení (Hendl, 2004). Statisticky významný výsledek má původ ve velkém rozsahu souboru hodnot a v přítomnosti silových skupin bodů (subpopulací).

Obdobným způsobem byly dále statisticky zpracovány údaje z HVB2. Na obr. 4.12 je zachycen průběh rychlostí uvolňování anorganické a anorganické formy ¹⁴C ve vnitřním komíně HVB2 po dnech a změny výkonu reaktoru.



Obr. 4.12 Rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ a ¹⁴C_xH_y po dnech ve vnitřním komínu HVB2, porovnání s výkonem reaktoru. Na hlavní (levé) vertikální ose jsou zaznamenány rychlosti uvolňování jednotlivých forem ¹⁴C. Na vedlejší pořadnici jsou zanesena procenta nominálního tepelného výkonu reaktoru. Na časové horizontální ose jsou uvedeny dny. Čárkovanou světlejší čarou je značen průběh výkonu. Silnější plná čára značí ¹⁴CO₂, slabší plná čára ¹⁴C_xH_y. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.6.2002 do 26.12.2006.

Graf ukazuje, že časový průběh rychlostí uvolňování ¹⁴CO₂ určitým způsobem kopíruje průběh rychlostí uvolňování ¹⁴C_xH_y. Vypouštěné aktivity organických forem jsou přibližně o 1 řád vyšší než denní vypouštěné aktivity ¹⁴C ve formě CO₂. Z grafu je také patrný vliv odstávek reaktoru HVB2 na vypouštěné množství ¹⁴C. Při odstavení reaktoru nebo snížení výkonu dochází k omezení tvorby i rychlosti uvolňování forem ¹⁴C. Hodnoty mají zřetelný chod (postupný růst, nebo pokles) v souvislost s provozním režimem (výkon reaktoru, odstávka bloku).

Vzájemná závislost mezi rychlostmi uvolňování anorganické a organické formy ¹⁴C a výkonem reaktoru byla zkoumána nástroji regresní a korelační analýzy. Výsledky byly vyjádřeny Spearmanovým pořadovým korelačním koeficientem r_s a rovnicí lineární regrese metodou nejmenších čtverců. Graficky znázorňuje výsledek obr. 4.13 a obr. 4.14.



Obr. 4.13 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ HVB2 na výkonu reaktoru. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.6.2002 do 26.12.2006 (n = 601). Na horizontální ose jsou uvedena procenta nominálního výkonu reaktoru, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴CO₂.

Míra monotónní závislosti rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ na výkonu reaktoru HVB2 je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,1491$, p = 1,12E-009). Metoda nejmenších čtverců vede k odhadu (y = 0,0001x + 0,012, p = 9,38E-11; $R^2 = 0,0248$). Regresní přímka vysvětluje pouze necelé 2,5 % z celkové variability ¹⁴CO₂ ve vnitřním komínu HVB2 závislostí této veličiny na výkonu reaktoru.



Obr. 4.14 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴C_xH_y HVB2 na výkonu reaktoru. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.6.2002 do 26.12.2006 (n = 601). Na horizontální ose jsou uvedena procenta nominálního výkonu reaktoru, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴C_xH_y.

Míra monotónní závislosti mezi proměnnými (rychlost uvolňování ¹⁴C_xH_y a výkon reaktoru HVB2) je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,5184$, p = 1,52E-099). Metoda nejmenších čtverců vede k odhadu (y = 0,0056x + 0,2197, p = 1,6E-135, $R^2 = 0,3080$). Přibližně 31 % celkové variability ¹⁴C_xH_y ve vnitřním komínu HVB2 je ve zvoleném regresním modelu objasněno závislostí této veličiny na výkonu reaktoru. Zbylých přibližně 69 % změn průběhu rychlosti uvolňování ¹⁴C_xH_y je způsobeno jinými vlivy než je výkon reaktoru.

Hodnota pořadového korelačního koeficientu vychází v obou případech průkazná na všech běžně používaných hladinách významnosti, avšak předpoklad prvního pohledu z grafů závislosti ukazuje z praktického hlediska na nevýraznou korelaci. Empirickou volbou se nepodařilo identifikovat přítomnost žádného jednoduchého, zřejmého stochastického vztahu mezi daty. Z grafů je zjevná nehomogenita, která se projevuje

jako shluky bodů pro subpopulace v oblasti nejnižších a nejvyšších hodnot. Poloha regresní přímky je ovlivněna touto nehomogenitou. Validita testu statistické významnosti použitého modelu jednoduché lineární regrese (Fisherův-Snedecorův test významnosti regrese) je omezena nesplněním předpokladu normality závislé proměnné, který zaručuje oprávněnost použití kvantilů *F* rozdělení. Statisticky významný výsledek má původ ve velkém rozsahu souboru hodnot a v přítomnosti silových skupin bodů (subpopulací).

4.5 Relace mezi rychlostmi uvolňování chemických forem ¹⁴C a koncentrací amonných iontů v chladivu primárního okruhu reaktorů HVB1 a HVB2

Dalším krokem analýzy bylo zhodnocení závislosti množství ¹⁴C uvolňovaného do ovzduší na koncentraci NH_4^+ v chladivu primárního okruhu.

V prvním přiblížení byla pozornost zaměřena na statistické rozdělení souborů hodnot. Kumulativní rozdělení hodnot koncentrace NH_4^+ v chladivu I.O. HVB1 a HVB2 ukazuje obr. 4.15. Z grafu je patrné, že rozdělení nejsou normální (jsou silně kladně sešikmená) ani logaritmicko-normální, ale jsou bimodální. Koncentrace NH_4^+ v chladivu se ve sledovaném období u obou výrobních bloků měnila až o dva řády.



Obr. 4.15 Kumulativní rozdělení koncentrací NH_4^+ v chladivu primárního okruhu HVB1 (n = 860) a HVB2 (n = 625). V grafu jsou zpracovány dostupné údaje za období od 18.3.2001 do 26.12.2006 (HVB1) a od 16.4.2002 do 26.12.2006 (HVB2). Na svislé ose jsou zaneseny kvantily normovaného normálního rozdělení, na vodorovné ose jsou na logaritmické stupnici vynesena data setříděná podle pořadí. Pro data pocházející z logaritmicko-normálního rozdělení bez odlehlých hodnot má graf tvar přímky. Pro lepší vizuální posouzení je daty proložena přímka metodou nejmenších čtverců.

Předpoklad prvního pohledu z grafu je, že statistická rozdělení (mediány) koncentrací $NH_4^+ v$ primárním okruhu HVB1 a HVB2 se signifikantně liší. Tuto skutečnost dokládá výsledek Mannova-Whitneyova testu. Rozdíl rozdělení výběrů koncentrací NH_4^+ pro HVB1 a HVB2 je průkazný na všech běžně používaných hladinách významnosti ($U_{860, 625} = 200343$, p = 5,07E-017). Zjištěný rozdíl zřejmě souvisí s kvalitou chemického režimu (řízení koncentrace NH_4^+ , odplyňování a odpouštění chladiva).

Na obr. 4.16 je vynesen v grafu průběh rychlosti uvolňování jednotlivých forem ${}^{14}C$ z HVB1 a koncentrace NH₄⁺ v chladivu HVB1.



Obr. 4.16 Změny rychlosti uvolňování ¹⁴C a koncentrace NH_4^+ v chladivu I.O. na HVB1 za období od 18.3.2001 do 26. 12. 2006. Na horizontální ose jsou uvedeny dny. Na hlavní (levé) vertikální ose jsou na logaritmické stupnici uvedeny rychlosti uvolňování jednotlivých forem radiouhlíku v jednotkách GBq den⁻¹. Tento způsob umožňuje zobrazovat veličiny v rozsahu mnoha řádů a jsou více zřejmé rozdíly v malých hodnotách. Na vedlejší vertikální ose jsou na lineární stupnici vyneseny koncentrace amonných iontů v roztoku chladiva primárního okruhu HVB1.

Předpoklad prvního pohledu z grafu 4.16 je, že trendy obou parametrů se navzájem sledují. Časový průběh parametru ¹⁴CO₂ a ¹⁴C_xH_y v mezích chyb dobře kopíruje průběh parametru NH_4^+ .

Vzájemná závislost mezi hodnotami rychlosti vypouštění anorganické a organické formy radiouhlíku a koncentrace amonných iontů (NH_4^+) v chladivu I.O. byla zkoumána nástroji regresní a korelační analýzy. Výsledky byly vyjádřeny Spearmanovým pořadovým korelačním koeficientem r_s a rovnicí lineární regrese metodou nejmenších čtverců. Graficky je výsledek vyjádřen ve formě rozptylového grafu na obr 4.17 a obr. 4.18.



Obr. 4.17 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ HVB1 na na koncentraci NH₄⁺. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 18.3.2001 do 26. 12. 2006 (n = 860). Na horizontální je uvedena koncentrace amonných iontů v roztoku primárního chladiva, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴CO₂.

Míra monotónní závislosti mezi proměnnými (rychlost uvolňování ¹⁴CO₂ a koncentrace NH₄⁺) v I.O. je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,0668, p = 0,0504$). Metodou nejmenších čtverců byly vypočteny parametry regresní rovnice ($y = -0,0003x + 0,0212, p = 0,2002, R^2 = 0,0019$), tzn. pouze necelé 1 % variability ¹⁴CO₂ ve vnitřním komínu HVB1 je v regresním modelu vysvětleno závislostí této veličiny na koncentraci NH₄⁺ v I.O.



Obr. 4.18 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴C_xH_y HVB1 na koncentraci NH₄⁺. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 18.3.2001 do 26. 12. 2006 (n = 860). Na horizontální je uvedena koncentrace amonných iontů v roztoku primárního chladiva, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴C_xH_y.

Míra závislosti mezi proměnnými (rychlost uvolňování ¹⁴C_xH_y a koncentrace NH₄⁺) v I.O. HVB1 byla kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = -0,0372, p = 0,2760$). Metodou nejmenších čtverců byly vypočteny parametry regresní rovnice ($y = -0,0067x + 0,5332, p = 0,0184, R^2 = 0,0065$). Regresní přímka nevysvětluje ani 1 % změn rychlosti uvolňování ¹⁴C_xH_y ve vnitřním komínu HVB1.

V obou případech vycházejí hodnoty pořadového korelačního koeficientu nesignifikantní, což je v dobré shodě s předpokladem prvního pohledu z grafů, že veličiny spolu navzájem nekorelují. Validita testu statistické významnosti použitého modelu jednoduché lineární regrese (Fisherův-Snedecorův test významnosti regrese) je omezena nesplněním předpokladu normality závislé proměnné, který zaručuje oprávněnost použití kvantilů *F* rozdělení. Empirickou volbou nebyla nalezena

přítomnost žádného zřejmého jednoduchého stochastického vztahu mezi daty. Z grafů je zřejmá nehomogenita a přítomnost vlivných bodů které ovlivňují polohu regresní přímky.

Analogicky byla dále provedena analýza dat pro HVB2. Následující obrázek (4.19) prezentuje průběh rychlosti uvolňování jednotlivých forem ¹⁴C z HVB2 a koncentrace NH_4^+ v chladivu HVB2.



Obr. 4.19 Změny rychlosti uvolňování ¹⁴C a koncentrace NH_4^+ HVB2 za období od 18.4.2002 do 26. 12. 2006. Na horizontální ose jsou uvedeny dny. Na hlavní (levé) vertikální ose jsou na logaritmické stupnici uvedeny rychlosti uvolňování jednotlivých forem radiouhlíku v jednotkách GBq den⁻¹. Tento způsob umožňuje zobrazovat veličiny v rozsahu mnoha řádů a jsou více zřejmé rozdíly v malých hodnotách. Na vedlejší vertikální ose jsou na lineární stupnici vyneseny hodnoty koncentrace amonných iontů v roztoku chladiva primárního okruhu HVB2.

Předpoklad prvního pohledu z grafu je, že trendy obou parametrů se navzájem sledují. Časový průběh parametru ${}^{14}CO_2$ a ${}^{14}C_xH_y$ dobře kopíruje průběh parametru NH₄⁺. Parametr NH_4^+ vykazuje tři výrazně zvýšené hodnoty v období 18.10.–16.11.2006 s maximem 64 mg l⁻¹.

Vzájemná závislost mezi hodnotami rychlosti vypouštění anorganické a organické formy radiouhlíku a koncentrace amonných iontů (NH_4^+) v chladivu I.O. byla zkoumána nástroji regresní a korelační analýzy. Výsledky byly vyjádřeny Spearmanovým pořadovým korelačním koeficientem r_s a rovnicí lineární regrese metodou nejmenších čtverců. Graficky je výsledek vyjádřen v podobě rozptylových grafů na obr. 4.20 a obr. 4.21.



Obr. 4.20 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ HVB2 na na koncentraci NH₄⁺. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.6.2001 do 26. 12. 2006 (n = 601). Na horizontální je uvedena koncentrace amonných iontů v roztoku primárního chladiva, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴CO₂.

Míra monotónní závislosti mezi proměnnými (rychlost uvolňování ¹⁴CO₂ a koncentrace NH₄⁺) v I.O. je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,0754$, p = 0,0647). Metodou nejmenších čtverců dává odhad parametrů regresní

rovnice (y = -0,0002x + 0,0232, p = 0,4052, $R^2 = 0,0012$). Jen cca 0,1 % variability ¹⁴CO₂ ve vnitřním komínu HVB2 je v regresním modelu vysvětleno závislostí této veličiny na koncentraci NH₄⁺ v I.O.



Obr. 4.21 Závislost rychlosti uvolňování ¹⁴C_xH_y HVB2 na na koncentraci NH₄⁺. Data vynesená do grafu se vztahují k období od 1.6.2001 do 26. 12. 2006 (n = 601). Na horizontální je uvedena koncentrace amonných iontů v roztoku primárního chladiva, na vertikální ose rychlost uvolňování ¹⁴CO₂.

Míra monotónní závislosti mezi proměnnými (rychlost uvolňování ¹⁴C_xH_y a koncentrace NH₄⁺) v I.O. HVB1 je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = -0,1564, p = 0,0001$). Metodou nejmenších čtverců byly vypočteny parametry regresní rovnice ($y = -0,0153x + 0,7709, p = 1,79E-07, R^2 = 0,0455$). Závislostí na koncentraci NH₄⁺ je v regresním modelu vysvětleno jen něco okolo 4,6 % z variability organické formy ¹⁴C ve vnitřním komínu HVB2.

V případě vzájemné korelace s ${}^{14}C_xH_y$ vychází negativní pořadová korelace průkazná na všech běžně používaných hladinách významnosti, předpoklad prvního pohledu

z grafů však je, že korelace je z praktického hlediska nevýrazná. Statistická významnost pořadového korelačního koeficientu má původ ve velkém rozsahu souboru hodnot. Validita testu statistické významnosti použitého modelu jednoduché lineární regrese (Fisherův-Snedecorův test významnosti regrese) je omezena nesplněním předpokladu normality závislé proměnné, který zaručuje oprávněnost použití kvantilů *F* rozdělení. Empirickou volbou nebyl nalezen žádný jednoduchý, zřejmý stochastický vztah mezi daty. Z grafů je zřejmá nehomogenita a přítomnost vlivných bodů které ovlivňují polohu regresní přímky.

4.6 Relace mezi chemickými formami ¹⁴C ve výpustech HVB1 a HVB2

V dalším kroku byla statistickými nástroji zkoumána relace mezi organickou a anorganickou formou ¹⁴C uvolňovaného z vnitřních komínů HVB1 a HVB2. Graficky je výsledek znázorněn v podobě rozptylového grafu na obr. 4.22.



Obr. 4.22 Závislost toků organické a anorganické formy ¹⁴C ve vnitřních komínech HVB1 (n = 182) a HVB2 (n = 162). V grafu jsou vyneseny hodnoty za období od 2.10. 2000 do 26.12.2006 (HVB1) resp. od 31.5.2002 do 26.12.2006 (HVB2). Na horizontální ose jsou uvedeny toky organické formy ¹⁴C, na vertikální toky formy ¹⁴CO₂. Černé kroužky označují data z HVB1, trojúhelníkové tvary bez výplně data z HVB2. Pro lepší vizuální posouzení vzájemné závislosti je daty proložena regresní přímka metodou nejmenších čtverců.

Míra závislosti mezi toky anorganických (${}^{14}C_xH_y$) a anorganických (${}^{14}CO_2$) forem radioaktivního uhlíku ve vnitřním komínu HVB1 je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,2509, p = 7,37E-004$).

Míra závislosti mezi ¹⁴C_xH_y a ¹⁴CO₂ ve vnitřním komínu HVB2 je kvantitativně vyjádřena Spearmanovým koeficientem pořadové korelace ($r_s = 0,3424$, p = 7,40E-005).

Hodnota pořadového korelačního koeficientu vychází v obou případech průkazná na všech běžně používaných hladinách významnosti, avšak předpoklad prvního pohledu z grafů závislosti ukazuje z praktického hlediska na nevýraznou korelaci. Toky obou

forem oscilují nezávisle. Statistická významnost pořadových korelačních koeficientů má původ ve velkém rozsahu souboru hodnot.

4.7 Průběh výpustí ¹⁴C při odstávkách reaktorů

V této části práce byly hledány parametry charakterizující chování aktivit ¹⁴C v plynných výpustech komínů výrobních bloků po odstávce reaktoru.

Výrobní bloky se plánovaně odstavují za účelem výměny paliva po dosažení projektového vyhoření. Přitom se provádí odstranění závad zjištěných v průběhu provozu, kontroly a vyplývající opravy. Rozsah prováděných činností během odstávky stejně jako jejich časový průběh mohou být do jisté míry variabilní.

Výměna paliva je kampaňovitá a provádí se na vychlazeném a demontovaném reaktoru. Výměna a překládka paliva se provádí zpravidla $1 \times$ ročně, přičemž se 1/4 palivových souborů vyveze a zbylé 3/4 se přeskupí (Odehnal, 2003a)

Vysoký stupeň jaderné bezpečnosti je zajišťován pravidelnými kontrolami hlavních komponent jaderného reaktoru podle programů zajištění jakosti a podléhá kontrole ze strany SÚJB. Kontroly vyžadují vyvezení veškerého paliva a vyjmutí některých částí reaktoru. Tato odstávka se označuje velká výměna paliva nebo rozšířená generální oprava a její periodicita je 4 roky (Odehnal, 2003b).

Časové údaje o průběhu a délce trvání odstávek za období let 2003–2006 byly převzaty ze zpráv o výsledcích monitorování výpustí a radiační situaci v okolí Jaderné elektrárny Temelín a jsou přehlednou formou uvedeny v tab. 4.6 pro HVB1 a v tab. 4.7 pro HVB2. Do přehledu a dalšího zpracování nebyla uvažována taková odstavení bloku, jejichž délka byla menší nebo nejvýše rovna tři dny.

Termín		
od	do	Počet dnů odstávky
02.02.2003	09.04.2003	67
04.08.2003	21.08.2003	18
19.04.2004	02.07.2004	75
07.04.2005	17.04.2005	11
01.08.2005	20.09.2005	51
19.12.2005	28.12.2005	10
04.06.2006	30.07.2006	57

Tab. 4.6 Časový průběh odstávek HVB1.

Tab. 4.7 Časový průběh odstávek HVB2.

Termín		
od	do	Počet dnů odstávky
10.03.2003	20.03.2003	11
01.10.2003	17.10.2003	18
07.02.2004	29.03.2004	52
04.06.2004	11.06.2004	8
09.04.2005	27.06.2005	79
06.01.2006	10.01.2006	5
27.08.2006	02.11.2006	68

První spuštění reaktoru HVB1 se uskutečnilo 11. října 2000 a v následujícím období probíhaly testy energetického spouštění na dílčích výkonových hladinách až do plného nominálního výkonu, po té bylo provedeno komplexní vyzkoušení celého výrobního bloku. Zkušební provoz prvního bloku byl zahájen 10. června 2002, trvalý komerční provoz 11. října 2004.

Reaktor HVB2 byl spuštěn 31. května 2002 a v následujícím období probíhaly testy energetického spouštění na dílčích výkonových hladinách až do plného nominálního výkonu, poté bylo provedeno komplexní vyzkoušení celého výrobního bloku. Zkušební provoz druhého bloku byl zahájen 18. dubna 2003, trvalý komerční provoz 11. října 2004.

Pro přechod mezi výkonovým a nevýkonovým stavem reaktoru je určujícím parametrem 2 % nominálního tepelného výkonu (Odehnal, 2003a). Rozdělení výběrů rychlostí uvolňování sumy forem ¹⁴C v HVB1 v období s výkonovým provozem bloku (P \geq 2 % nominálního tepelného výkonu) a v období s nevýkonovým stavem (P < 2 % nominálního tepelného výkonu) byla testována na shodnost pomocí Mannova-Whitneyova testu. Rozdíl aktivit ¹⁴CO₂ je průkazný na každé z běžně používaných hladin ($U_{542, 137} = 249926, 5$, p = 5,62E-029), což platí i pro aktivity ¹⁴C_xH_y ($U_{542, 1371} = 75371, 5$, p = 5,47E-163). Rychlosti uvolňování obou chemických forem ¹⁴C jsou statisticky významně nižší v případech nevýkonových stavů reaktoru HVB1 (tj. P < 2 % nominálního tepelného výkonu).

Rozdělení výběrů rychlostí uvolňování ¹⁴C v HVB2 v období s výkonovým provozem bloku (P $\ge 2 \% N_{nom}$) a v období s nevýkonovým stavem (P $< 2 \% N_{nom}$) byly testovány na shodu pomocí Mannova-Whitneyova testu. Výsledek testu je průkazný na všech běžně používaných hladinách významnosti pro chemickou formu ¹⁴CO₂ ($U_{536, 1134} = 212558$, p = 3,07E-023) i ¹⁴C_xH_y ($U_{536, 1134} = 92282$, p = 4,15E-117). Rychlosti uvolňování obou chemických forem ¹⁴C jsou statisticky významně nižší v případech nevýkonových stavů reaktoru HVB2 (tj. P < 2 % nominálního tepelného výkonu).

Dále je v tab. 4.8 uvedeno procentuální snížení rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ a ¹⁴C_xH_y pro HVB1 a HVB2 při nevýkonových stavech reaktoru ($P \ge 2 \% N_{nom}$), procenta jsou vztažena k hodnotám aritmetického průměru parametrů.

	HVB1		HV	<u>B2</u>
	$^{14}\text{CO}_2$	$^{14}C_{x}H_{y}$	$^{14}\text{CO}_2$	$^{14}C_{x}H_{y}$
	$(GBq den^{-1})$	$(GBq den^{-1})$	$(GBq den^{-1})$	$(GBq den^{-1})$
Průměrná rychlost uvolňování (P ≥ 2 % N _{nom})	0,0196	0,556	0,0218	0,711
Průměrná rychlost uvolňování (P < 2 % N _{nom})	0,0159	0,148	0,0113	0,224
Snížení na [†] (%)	81,4	26,7	51,9	31,5

Tab. 4.8 Snížení rychlostí uvolňování forem 14 C při nevýkonových stavech reaktoru HVB1 a HVB2.

[†]Snížení je vztaženo na průměrnou rychlost uvolňování při $P \ge 2 \% N_{nom}$.

Z tabulky vyplývá, že snížení rychlostí uvolňování při nevýkonovém stavu reaktoru je výraznější pro organické formy radiouhlíku (${}^{14}C_xH_y$), kde představuje přibližně 70 % pro oba výrobní bloky. U formy ${}^{14}CO_2$ je tato hodnota nižší a představuje snížení přibližně o 20 % v případě HVB1 a cca o 50 % v případě HVB2.

Rychlosti uvolňování ¹⁴C (suma forem) z jednotlivých odstávek HVB1 a HVB2 byly zpracovány do časových řad, kde ke každému jednotlivému dni od počátku odstávky byla přiřazena hodnota. Výsledkem je časový průběh rychlostí uvolňování v jednotlivých dnech od počátku odstávky, jak je uvedeno na obr. 4.23 a obr. 4.24.



Obr. 4.23 Časový průběh rychlosti uvolňování ¹⁴C (bez rozlišení forem) ve vnitřním komíně HVB1 v průběhu odstávek. Na svislé ose je uvedena rychlost uvolňování ¹⁴C, na vodorovné je uveden počet dnů od zahájení odstávky. Sestaveno z dostupných údajů o počtu a délce trvání odstávek v letech 2002–2006. Celkem zpracovaný počet odstávek 7, celkový počet dní těchto odstávek je 289, průměrná délka trvání odstávky 41 dnů.



Obr. 4.24 Časový průběh rychlosti uvolňování ¹⁴C (bez rozlišení forem) ve vnitřním komíně HVB2 v průběhu odstávek. Na svislé ose je uvedena rychlost uvolňování ¹⁴C, na vodorovné je uveden počet dnů od zahájení odstávky. Sestaveno z dostupných údajů o počtu a délce trvání odstávek v letech 2003–2006. Celkem zpracovaný počet odstávek 7, celkový počet dní těchto odstávek je 241, průměrná délka trvání odstávky 34 dnů.

Z grafů je vidět, že pokles rychlosti uvolňování ¹⁴C na HVB1 vykazuje přibližně kontinuální pokles, s mírným kolísavým vzestupem mezi 60. až 75. dnem odstávky. Pokles rychlosti uvolňování ¹⁴C ve výpustech HVB2 po odstávce není kontinuální, vyskytují se zde tři spiky (výrony aktivity), prvý přibližně mezi 45. až 53. dnem, druhý mezi 65. až 79. a třetí mezi 73. až 80. dnem odstávky.

Z porovnání časového harmonogramu činností prováděných v době odstávek uvedených v denních plánech vyplývá, že navýšení aktivit ¹⁴C přibližně časově odpovídají přechodu mezi provozními režimy (odstávka, studený stav) a přípravným operacím pro najetí bloku po odstávce (zaplňování, ohřev, zvyšování tlaku a odvzdušnění I.O., ohřev odplyňovače I.O.). Jednotlivá navýšení v grafu na obr. 4.24

jsou způsobena superpozicí několika odstávek s různou délkou trvání. Nárůst je prakticky patrný jen u déletrvajících odstávek, kde došlo k předchozímu výraznějšímu poklesu aktivity uvolňovaného 14 C.

Pro vyjádření doběhů aktivit ¹⁴C ve výpustech v průběhu odstávek byly pozorované rychlosti uvolňování v průběhu odstávky vztaženy na výchozí hodnotu (tj. na začátku poklesu). Normalizované doběhy jsou uvedeny na obr. 4.25 a 4.26.





Empirickou volbou bylo porovnáním alternativních modelů (přímka, mocninná funkce, exponenciála, hyperbola, polynom 2. stupně) na základě hodnoty determinačního koeficientu (resp. determinačního indexu) a velikosti reziduální směrodatné odchylky s_R zvoleno nejvhodnější proložení. Platí, že čím nižší je hodnota reziduální směrodatné odchylky, tím blíže je regresní funkce jednotlivým bodům (Popelka, 2006). Parametry

regresní rovnice byly vypočteny metodou nejmenších čtverců po linearizační transformaci regresního vztahu na rovnici přímky. Odhady parametrů získané tímto jednoduchým řešením jsou však vychýlené a proto vhodné pouze jako nulté přiblížení (aproximace) pro nelineární regresní modely (Synek, 2006).

Relativně dobré přizpůsobení křivky doběhu aktivity ¹⁴C po odstávce HVB1 vykazuje polynom 2. stupně ($s_R = 0,0661$) vyjádřený parametry regresní rovnice ($y = 0,0004x^2 - 0,036x + 0,9099$, p = 2,19E-30, $I_{adj.}^2 = 0,9430$). Zvolenému regresnímu modelu vyhovuje více než 94 % bodů z grafu na obr. 4.25.



Obr. 4.26 Doběh aktivity ¹⁴C ve vnitřním komíně HVB2 po odstávce bloku, do 35. dne, vztaženo na výchozí aktivitu (začátek doběhu). Plná čára označuje proložení dat polynomem 2 stupně.

Doběh aktivity ¹⁴C po odstávce HVB2 rovněž nejlépe vystihuje parabola ($s_R = 0,0916$) s odhadem parametrů regresní rovnice ($y = 0,0009x^2 - 0,0634x + 1,1586$, p = 3,25E-19, $I_{adj.}^2 = 0,9257$). Tímto regresním modelem je vysvětleno více než 92 % z celkové variability doběhu aktivity ¹⁴C ve vnitřním komínu HVB2 během odstávky. Zbylých přibližně 8 % změn doběhu aktivity je způsobeno jinými vlivy než je čas.

4.8 Dávková zátěž

Shrnutí základních údajů o množství a formách uvolňovaného ¹⁴C ETE za období let 2001–2006 jsou uvedeny v následující tabulce (tab. 4.9).

Tab. 4.9 Plynné výpusti ¹⁴C ETE za rok (oba bloky a BAPP, součet vnitřních a vnějších komínů na obou blocích).

Rok	Vypouštěná aktivita ¹⁴ CO ₂ (GBq)	Vypouštěná aktivita ¹⁴ C _x H _y (GBq)	Celková vypouštěná aktivita ¹⁴ C (GBq)	Podíl ¹⁴ CO ₂ /suma forem (%)	Vyrobená elektrická energie (GW(e) rok ⁻¹)	Normalizovaná výpusť (suma forem ¹⁴ C) (GBq GW(e) ⁻¹ rok ⁻¹)
2001	8,37	12,9	21,3	39	0,132	161
2002	9,72	124	134	7,3	0,621	216
2003	13,1	322	335	3,9	1,38	242
2004	15,5	394	409	3,8	1,45	283
2005	26,5	385	412	6,4	1,25	329
2006	22,0	539	561	3,9	1,37	409

Vliv jaderné elektrárny na okolní obyvatelstvo a životní prostředí je dán především úrovní kvality technologického zařízení a technologických procesů. Mírou této kvality je ozáření jednotlivce z obyvatelstva resp. ozáření kritické skupiny obyvatelstva v důsledku radioaktivních výpustí do okolí (Klener et al., 2000).

Za normálního provozu nejsou (s výjimkou tritia vypouštěného z lehkovodních reaktorů do vodotečí a ¹⁴C) výpusti radionuklidů z jaderné elektrárny po jejich zředění v životním prostředí již měřitelné (Klener et al., 2000, Roussel-Debet, 2006). Prakticky jediný možný způsob stanovení příspěvku radiační zátěže obyvatelstva v okolí z provozu JE je stanovení bilancí (aktivit) plynných a kapalných výpustí a stanovení efektivních dávek jedince kritické skupiny obyvatelstva autorizovaným postupem (ČEZ, 2006).

Hodnocení dávkové zátěže obdržené z plynných výpustí ¹⁴C v období let 2001–2006 bylo provedeno pomocí konzervativního převodního koeficientu pro konzervativní přepočet aktivity ¹⁴C vypouštěného do ovzduší na součet efektivní dávky ze zevního ozáření a úvazku efektivní dávky z vnitřního ozáření jednotlivce z kritické skupiny obyvatelstva (E + E₍₅₀₎) (dále jen efektivní dávka), jako součin celkové aktivity radionuklidu ¹⁴C vypuštěného do ovzduší za sledované období a převodního koeficientu h = 1,85E-18 (Sv Bq⁻¹). Tento způsob výpočtu se používá na ETE pro účely průběžné kontroly a regulace výpustí. Hodnota konzervativního převodního koeficientu je stanovena rozhodnutím SÚJB čj. 16920/2002 na základě výpočtů s použitím komplexního programu NORMAL, vyvinutého v Ústavu teorie informace a automatizace AV ČR v Praze (Pecha & Pechová, 1999) pro hodnocení radiačních zátěží prostředí a obyvatelstva v okolí jaderných zařízení. Koeficient je stanoven pro místní specifické podmínky (zalidnění a zalesnění, vydatnost vodotečí, skladba potravin, zdroje pitné vody), s ohledem na vlastnosti radionuklidu, zahrnuje všechny možné způsoby vnějšího i vnitřního ozáření (pobyt v okolí JE, konzumace potravin a vody v okolí JE) a obsahuje konversní faktory h_{inh} a h_{ing} z přílohy platného znění vyhlášky 307/2002 Sb. (Koc et al., 2005; Klener et al., 2000).

Pro konzervativní výpočet je použita celková vypouštěná aktivita ¹⁴C jako součet organické a anorganické složky. Jedincem z kritické skupiny obyvatelstva se rozumí jednotlivec z populace v zóně havarijního plánování příslušné jaderné elektrárny (SÚJB, 2002; Koc et al., 2005). Pro názornost je dále uveden příklad konzervativního výpočtu efektivní dávky za rok 2006:

 $E + E_{(50)} (Sv) = A_{14Csum} (GBq) \times 1E + 09 \times h (Sv Bq^{-1})$ = 560,92 × 1E+09 × 1,85E-18 = **1,04E-06 (Sv)**

Výsledky jsou uvedeny v tabulce 4.10 spolu s uvedením příspěvku ¹⁴C k celkové efektivní dávce z plynných výpustí.

Rok	$E + E_{(50)}$ (Sv)	Příspěvek ¹⁴ C k celkové E + E ₍₅₀₎ z plynných výpustí (%)
2001	6,60E–09	13
2002	4,14E–08	12
2003	6,19E–07	73
2004	7,58E–07	95
2005	7,62E–07	94
2006	1,04E-06	96

Tab. 4.10 Konzervativní hodnoty efektivní dávky z plynných výpustí ¹⁴C ETE za rok.

Z uvedených konzervativních hodnot efektivních dávek bylo zpětně odhadnuto konzervativní navýšení aktivit ¹⁴C v zemědělských plodinách blízkého okolí ETE. Odhad vycházel z předpokladu, že ¹⁴C bude přijímán dospělým jednotlivcem z kritické skupiny obyvatelstva pouze cestou ingesce. S ohledem na možné cesty příjmu ¹⁴C člověkem dle (UNSCEAR, 2000) byl pro účely přibližného odhadu zanedbán příjem cestou inhalace ¹⁴CO₂ a ¹⁴CH₄. Pro přepočet byl použit konversní faktor $5,80 \cdot 10^{-10}$ Sv Bq⁻¹ pro ingesci ¹⁴C dospělým jedincem z obyvatelstva. Za předpokladu ročního příjmu 146 kg uhlíku (tj. pro denní příjem 400 g C), viz kapitola 1.1 (Šeda et al., 1983) byla z aktivity ¹⁴C přijatého cestou ingesce vypočtena měrná aktivita odpovídající navýšení v okolí ETE. Navýšení měrných aktivit bylo přepočteno na promile Δ^{14} C dle Stuiver-Polachovy konvence (Stuiver & Polach, 1977). Výsledky jsou přehlednou formou uvedeny v následující tabulce (tab. 4.11).

	$E + E_{(50)}$	Aing ¹⁴ C	Navýšení aktivity ¹⁴ C	Navýšení aktivity ¹⁴ C
Rok	(Sv)	(Bq)	$(\mathrm{Bq} \mathrm{g}^{-1})$	$(\% \Delta^{14}C)$
2002	4,14E-08	71	0,0005	2,2
2003	6,19E-07	1067	0,0073	32,3
2004	7,58E–07	1307	0,0089	39,6
2005	7,62E–07	1314	0,0090	39,8
2006	1,04E-06	1793	0,0123	54,3

Tab. 4.11 Odhad konzervativního navýšení aktivity 14 C v biotě okolí ETE zpětným přepočtem z efektivních dávek.

5 DISKUSE VÝSLEDKŮ

Byly shromážděny údaje o objemových aktivitách sumy forem ¹⁴C a ¹⁴CO₂ v plynných výpustech HVB1, HVB2 a BAPP za období 2001 až 2006, vyjadřováno v Bq m⁻³. Z rozdílů objemových aktivit sumy forem a ¹⁴CO₂ byly vypočteny objemové aktivity forem spalitelných, v textu uváděno jako ¹⁴C_xH_y. S použitím údajů o množství vzduchu uvolněného z ventilačních komínů byly objemové aktivity přepočteny na toky forem ¹⁴C, v textu vyjadřováno v GBq den⁻¹.

Každému dni byla poté přiřazena hodnota toku za účelem porovnávání s dalšími údaji (výkonové hladiny reaktorů, koncentrace amonných iontů v chladivu primárního okruhu). Časové řady zahrnující toky forem ¹⁴C v každém dni jsou pro rozlišení v této práci označovány jako rychlosti uvolňování a vyjadřovány rovněž v GBq den⁻¹.

Údaje o výpustech chemických forem ¹⁴C byly dále doplněny o dostupná data o výkonech reaktorů a koncentrace amonných iontů v chladivu primárního okruhu. Tyto ukazatele by dle dostupné literatury měly být základními faktory určujícími rychlost produkce ¹⁴C.

V rámci této práce byly toky forem ¹⁴C nejprve analyzovány s použitím zobrazení kumulativního rozdělení v pravděpodobnostních grafech. V diagramu 4.1 pro toky sumy chemických forem je patrné vícemodální rozdělení pro HVB1 a HVB2, toky pro BAPP přibližně odpovídají logaritmicko-normálnímu rozdělení, je zde však patrná přítomnost několika odlehlých hodnot v oblasti nejnižších aktivit. Pokud porovnáváme tvary kumulativních diagramů HVB1 a HVB2, je zde patrná jistá podobnost. Pokud však porovnáváme hodnoty toků na HVB1 a HVB2, je prokázán vysoce významný statistický rozdíl. Statistické rozdělení toků ¹⁴CO₂ na HVB1 a BAPP se blíží logaritmicko-normálnímu rozdělení s výjimkou přítomnosti několika odlehlých hodnot v oblasti nejnižších aktivit. Toky ¹⁴CO₂ HVB2 předpoklad logaritmicko-normálního rozdělení splňují, viz obr. 4.2. Diagram 4.3 forem ¹⁴C_xH_y pro HVB1 a HVB2 vykazuje jistou podobnost s diagramem sumy forem. Především po odstranění vlivu ¹⁴CO₂ v oblastech nižších hodnot je vícemodální rozdělení toků ¹⁴C_xH_y výraznější pro oba

bloky. V oblasti odpovídající vyšším aktivitám je v diagramu 4.3 patrná přechodová oblast (zalomení) přibližně v rozmezí 0,4 až 0,8 GBq den⁻¹, s relativními četnostmi nejvyšších toků pro HVB1 a HVB2 přibližně 58 % a 79 %.

Z kumulativních rozdělení výkonových hladin reaktoru je patrná bimodalita rozdělení s výrazným zastoupením hodnot v oblastech 0–2 % (28 % pozorovaných hodnot na HVB1 a 38 % pozorovaných hodnot na HVB2) a 95–100 % (58 % pozorovaných hodnot na HVB1 a 43 % pozorovaných hodnot na HVB2) nominálního výkonu obou reaktorů. Výraznější zastoupení hodnot do 2 % na HVB2 je způsobeno zejména rokem 2002, kdy byl celkový počet dnů s výkonem reaktoru větším než 2 % jen 36.

Analýza dlouhodobých časových změn toků ¹⁴C (bez rozlišení chemických forem) potvrdila přítomnost statisticky významného rostoucího trendu ve výpustech HVB1. Na HVB2 a BAPP nebyl dlouhodobý trend statisticky prokazatelný.

Závislost rychlostí uvolňování ¹⁴CO₂ a ¹⁴C_xH_y na výkonu reaktoru HVB1 nebyla statisticky prokázána. Rovněž pro HVB2 nebyl potvrzen vztah mezi rychlostmi uvolňování forem ¹⁴C a výkonem reaktoru s použitím modelu jednoduché lineární regrese (Fisherův-Snedecorův test významnosti regrese). Ačkoliv v obou případech byl nalezen statisticky již významný výsledek relace mezi výkonem reaktorů a rychlostí uvolňování ¹⁴C_xH_y, z grafů je zjevná nehomogenita, která se projevuje jako shluky bodů v oblasti nejnižších a nejvyšších hodnot. Poloha regresní přímky je ovlivněna především těmito vlivnými body.

Dalším krokem analýzy bylo zhodnocení závislosti rychlosti uvolňování chemických forem ¹⁴C na koncentraci amonných iontů v chladivu primárního okruhu. V prvním přiblížení byla pozornost zaměřena na statistické rozdělení souborů hodnot. Kumulativní rozdělení hodnot koncentrace NH_4^+ v chladivu I.O. HVB1 a HVB2 ukazuje obr. 4.15. Z grafu je patrné, že rozdělení nejsou normální (jsou silně kladně sešikmená) ani logaritmicko-normální, ale jsou bimodální. Rozdíl rozdělení výběrů NH_4^+ v chladivu v I.O. HVB1 a HVB2 je vysoce statisticky významný. Empirickou volbou nebyl nalezen žádný jednoduchý, zřejmý stochastický vztah mezi koncentrací amonných iontů a rychlostmi uvolňování ¹⁴CO₂ a ¹⁴C_xH_y. Z grafů je patrná nehomogenita, a přítomnost vlivných bodů, které ovlivňují polohu regresní přímky. Dále byla ověřována možná relace mezi toky forem ${}^{14}CO_2$ a ${}^{14}C_xH_y$ pro HVB1 a HVB2, viz obr. 4.22. Z grafu a korelačních vztahů nevyplynula závislost, u obou reaktorů toky ${}^{14}CO_2$ oscilují nezávisle na ${}^{14}C_xH_y$.

Při odstávkách reaktorů dochází ke statisticky prokazatelnému snížení rychlostí uvolňování ¹⁴CO₂ i ¹⁴C_xH_y, viz tabulka 4.8. Z grafického znázornění průběhů rychlostí uvolňování ¹⁴C (bez rozlišení forem) po odstávce HVB1 je patrné, že pokles rychlosti uvolňování ¹⁴C na HVB1 je přibližně kontinuální, s mírným kolísavým vzestupem mezi 60. až 75. dnem odstávky, viz obr. 4.23. Pokles rychlosti uvolňování ¹⁴C ve výpustech HVB2 po odstávce vykazuje tři spiky (výrony aktivity), prvý přibližně mezi 45. až 53. dnem, druhý mezi 65. až 79. a třetí mezi 73. až 80. dnem odstávky, viz obr.4.24. Z časového harmonogramu činností prováděných v době odstávek uvedených v denních plánech vyplývá, že navýšení aktivit ¹⁴C přibližně časově odpovídají přechodu mezi provozními režimy (odstávka, studený stav) a přípravným operacím pro najetí bloku po odstávce (zaplňování, ohřev, zvyšování tlaku a odvzdušnění I.O., ohřev odplyňovače I.O.).

Pro vyjádření doběhů aktivity ¹⁴C ve výpustech v průběhu odstávek byly pozorované aktivity při odstávkách vztaženy na výchozí aktivitu (tj. na začátku doběhu). Pro každý den doběhu byl vypočten průměr, viz obr. 4.25 a 4.26. Relativně dobré přizpůsobení křivky doběhu aktivity ¹⁴C po odstávce HVB1 vykazuje polynom 2. stupně vyjádřený parametry regresní rovnice ($y = 0.0004x^2 - 0.036x + 0.9099$). Zvolenému regresnímu modelu vyhovuje více než 94 % bodů z grafu na obr. 4.28. Doběh aktivity ¹⁴C po odstávce HVB2 rovněž nejlépe vystihuje funkce s odhadem parametrů $(y = 0.0009x^2 - 0.0634x + 1.1586)$. Tímto modelem je vysvětleno více než 92 % z celkové variability doběhu aktivity ¹⁴C ve vnitřním komínu HVB2 při odstávce.

Konzervativní hodnocení efektivní dávky obdržené z plynných výpustí ¹⁴C v období let 2001–2006 bylo provedeno pomocí konzervativního převodního koeficientu pro převod aktivity ¹⁴C vypouštěného do ovzduší na součet efektivní dávky ze zevního ozáření a úvazku efektivní dávky z vnitřního ozáření jednotlivce z kritické skupiny obyvatelstva (E + $E_{(50)}$) (dále jen efektivní dávka), jako součin celkové aktivity radionuklidu ¹⁴C vypuštěného do ovzduší za sledované období a konzervativní hodnoty

převodního koeficientu h = 1,85E-18 (Sv Bq⁻¹). Výsledky jsou přehledným způsobem zobrazeny v tabulce 4.10.

Z uvedených efektivních dávek bylo zpětně odhadnuto konzervativní navýšení aktivit ¹⁴C v zemědělských plodinách blízkého okolí ETE. Odhad vycházel z předpokladu, že ¹⁴C bude přijímán dospělým jednotlivcem z kritické skupiny obyvatelstva pouze cestou ingesce. S ohledem na možné cesty příjmu ¹⁴C člověkem dle (UNSCEAR, 2000) byl pro účely přibližného odhadu zanedbán příjem cestou inhalace ¹⁴CO₂ a ¹⁴CH₄. Navýšení specifických aktivit byla přepočtena na promile Δ^{14} C dle Stuiver-Polachovy konvence (Stuiver & Polach, 1977). Odhady navýšení jsou uvedeny v tabulce 4.11.

Odhadovaná konzervativní navýšení specifické aktivity ¹⁴C v biotě (zemědělských plodinách) v okolí ETE jsou výrazně vyšší v porovnání s výsledky práce (Roussel-Debet, 2006). Tato práce se zabývá sledováním ¹⁴C v biotě okolí JE s lehkovodními tlakovými reaktory ve Francii. Za období 1994 až 2003 činilo střední navýšení přibližně 22 ‰ Δ^{14} C a odpovídá úvazku efektivní dávky od ročního příjmu ¹⁴C 1,9 · 10⁻⁷ Sv v nejvíce zatížených místech okolí francouzských JE.

Z hlediska příjmu inhalací forem ¹⁴C jsou v dostupných publikacích uváděny hodnoty konversních faktorů $6,2 \cdot 10^{-12}$ Sv Bq⁻¹ pro ¹⁴CO₂ a výrazně nižší hodnota $2,9 \cdot 10^{-12}$ Sv Bq⁻¹ pro ¹⁴CH₄ (ICRP, 1996), jak je uvedeno v kapitole 1.14. Dominantní spalitelnou formou v plynných výpustech je ¹⁴CH₄ (Kunz, 1985). Na základě v literatuře uvedených údajů lze proto předpokládat, že skutečný příspěvek od inhalace spalitelných forem ¹⁴C k dávkové zátěži bude nižší. Spalitelné formy s dominantním ¹⁴CH₄ jsou poměrně chemicky stabilní a podílejí se na navýšení aktivity atmosférického ¹⁴CO₂ spíše z globálního nežli lokálního hlediska (Eisma et al., 1995). V okolí JE proto téměř nedochází k jejich oxidaci na formu ¹⁴CO₂, ze které může ¹⁴C přecházet do okolní bioty a dále být přenášen potravním řetězcem (UNCEAR, 2000).

Normalizované roční výpusti ¹⁴C ETE (tj. vztažené na jednotku produkované elektrické energie) se po zprovoznění obou bloků pohybují v intervalu 216 až 409 GBq $GW(e)^{-1} \operatorname{rok}^{-1}$, viz tabulka 4.9, kapitola 4.8. Tento interval se přibližuje hodnotám 360 až 460 GBq $GW(e)^{-1} \operatorname{rok}^{-1}$ uváděným pro zahraniční JE

s lehkovodními tlakovými reaktory a je nižší nežli normalizovaná výpust JE Paks cca $820 \text{ GBq GW}(e)^{-1} \text{ rok}^{-1}$, podrobněji v kapitole 1.6 (Kunz, 1985; EPRI, 1995; CHEMCOMEX, 1999).

6 ZÁVĚR

Radionuklid ¹⁴C je isotopem uhlíku a je produkován všemi typy jaderných reaktorů v důsledku interakce neutronů s jádry uhlíku, dusíku, nebo kyslíku, které jsou přítomny jako součásti paliva, moderátoru, nebo jako příměsi a nečistoty v materiálech a hmotách přicházejících do styku s chladivem primárního okruhu. Množství ¹⁴C v odpadech vzniklých při provozu jaderných zařízení je variabilní v závislosti na typu reaktoru, výkonu a provozním režimu. ¹⁴C uvolněný ve formě oxidu uhličitého případně v dalších chemických formách, vstupuje do biosféry, kde je přijímán organismy cestou ingesce a inhalace. Tento radionuklid se v dominantní míře podílí na dávkové zátěži populace od radionuklidů vypouštěných za běžného provozu jaderných elektráren s lehkovodními tlakovými reaktory.

V rámci předkládané práce byly shromážděny údaje o výpustech chemických forem ¹⁴C z ventilačních komínů HVB1, HVB2 a BAPP ETE za období 2001 až 2006. Rovněž byla kompletována doprovodná data o výkonech reaktoru a koncentracích amonných iontů v chladivu primárního okruhu HVB1 a HVB2. Dle dostupné literatury zejména tyto parametry ovlivňují množství ¹⁴C uvolňované jadernými elektrárnami do životního prostředí.

Značná komplikace byla způsobena časově nerovnoměrným zastoupením výchozích dat. Pro vzájemné porovnávání byly proto údaje přepočteny na jednotlivé dny období let 2001 až 2006.

Porovnáním údajů byly potvrzeny odlišné hodnoty výpustí ¹⁴C (bez rozlišení forem) HVB1 a HVB2. Zastoupení formy ¹⁴CO₂ ve výpustech obou bloků je velmi nízké a obvykle se pohybuje v rozmezí jednotek procent. Ve výpustech BAPP je naopak ¹⁴CO₂ dominantní formou a zastoupení forem spalitelných není v rámci zpracovaných dat statisticky průkazné.

Vliv výkonu při provozu reaktorů HVB1 a HVB2 na výpusti forem ¹⁴C nebyl statisticky prokázán. Rovněž ovlivnění rychlosti uvolňování ¹⁴CO₂ i spalitelných forem

koncentrací amonných iontů v chladivu primárního okruhu není statisticky prokazatelné pro oba reaktory.

Rovněž nebyla nalezena souvislost mezi výpustmi ¹⁴CO₂ a spalitelných forem na blocích HVB1 a HVB2.

Statistická rozdělení toků ¹⁴CO₂ na HVB1 a BAPP se blíží logaritmicko-normálnímu rozdělení s výjimkou přítomnosti několika odlehlých hodnot v oblasti nejnižších aktivit. Toky ¹⁴CO₂ HVB2 předpoklad logaritmicko-normálního rozdělení splňují. Ostatní zkoumaná rozdělení jsou bimodální nebo vícemodální.

Z časového hlediska byl prokázán rostoucí trend ve výpustech HVB1. Dlouhodobý rostoucí trend ve výpustech HVB2 a BAPP prokázán nebyl.

Při odstávkách reaktorů dochází ke statisticky prokazatelnému snížení rychlostí uvolňování ¹⁴CO₂ i ¹⁴C_xH_y. Z grafického znázornění průběhů rychlostí uvolňování ¹⁴C (bez rozlišení forem) po odstávce HVB1 je patrné, že pokles rychlosti uvolňování ¹⁴C na HVB1 je přibližně kontinuální, s mírným kolísavým vzestupem mezi 60. až 75. dnem odstávky. Pokles rychlosti uvolňování ¹⁴C ve výpustech HVB2 po odstávce vykazuje tři spiky, prvý přibližně mezi 45. až 53. dnem, druhý mezi 65. až 79. a třetí mezi 73. až 80. dnem odstávky. Z časového harmonogramu činností prováděných v době odstávek uvedených v denních plánech vyplývá, že tato navýšení aktivit ¹⁴C přibližně časově odpovídají přechodu mezi provozními režimy (odstávka, studený stav) a přípravným operacím pro najetí bloku po odstávce. Doběhy aktivity při odstávkách reaktoru lze reprezentovat funkcemi závislosti rychlosti uvolňování na čase (kvadratické polynomy) přibližně do 50. a 35 dne na HVB1 a HVB2.

Výpusti ¹⁴C za období 2001 až 2006 byly s použitím konzervativní hodnoty převodního koeficientu přepočteny na úvazky efektivních dávek pro příjem jednotlivcem z kritické skupiny obyvatelstva porovnány s dostupným údajem pro dávkovou zátěž od ¹⁴C v okolí francouzských elektráren s lehkovodními tlakovými reaktory. Vypočtená efektivní dávka od příjmu ¹⁴C v okolí ETE je výrazně vyšší. Tento konzervativní odhad je rovněž navýšen vlivem příspěvku danému inhalací spalitelných forem (s převládajícím zastoupením ¹⁴CH₄). Na základě v literatuře uvedených údajů lze předpokládat, že skutečný příspěvek od inhalace spalitelných forem ¹⁴C k dávkové

zátěži bude nižší. Spalitelné formy s dominantním ${}^{14}CH_4$ jsou poměrně chemicky stabilní a podílejí se na navýšení aktivity atmosférického ${}^{14}CO_2$ spíše z globálního nežli lokálního hlediska.

Normalizované roční výpusti ¹⁴C ETE (tj. vztažené na jednotku produkované elektrické energie) se po zprovoznění obou bloků pohybují v intervalu 216 až 409 GBq $GW(e)^{-1}$ rok⁻¹. Tento interval se přibližuje hodnotám 360 až 460 GBq $GW(e)^{-1}$ rok⁻¹ uváděným pro zahraniční JE s lehkovodními tlakovými reaktory a je nižší nežli normalizovaná výpust JE Paks cca 820 GBq $GW(e)^{-1}$ rok⁻¹.

Výpusti ¹⁴CO₂ a spalitelných forem na obou blocích se vyznačují výraznými oscilacemi v širokém intervalu. Příčina těchto změn není vysvětlitelná pouze změnami výkonu reaktorů a koncentrací amonných iontů v chladivu primárního okruhu. Pro upřesnění příčiny/příčin těchto oscilací by bylo pravděpodobně zapotřebí především objasnit velikosti toků forem ¹⁴C, jejich časové změny, doby zdržení a možné příčiny kumulace v jednotlivých technologických částech HVB1 a HVB2.

7 SEZNAM POUŽITÉ LITERATURY

BOSÁ, I. ¹⁴C a ²²²Rn v prírodných médiách a ich využitie pre štúdium transportu d'alších plynov. Bratislava, 2001. 37 s. Písomná práca k dizertačnej skúške na Fakultě matematiky, fyziky a informatiky Univerzity Komenského v Bratislavě. Školitel RNDr. Karol Holý, CSc.

BRAY, G. R., MILLER, C. L., NGUYEN, T. D., RIEKE, J.W. Assessment of Carbon-14 Control Technology and Costs for the LWR Fuel Cycle. Rep. 520/4-77-013. Washington, DC: Environmental Protection Agency, 1977. 170 s. Podle International Atomic Energy Agency. Management of waste containing tritium and carbon-14. Technical reports series No. 421. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004, 109 p. ISBN 92–0–114303–6.

BROŽ, M., BEZVODA, V. *Microsoft Excel: Vzorce, funkce, výpočty.* 1. vyd. Brno: Computer Press, 2006. 567 s. ISBN 80–251–1088–5.

CENCINGER, F. Primární část JE VVER 1000: základní zařízení primárního okruhu. ČEZ, 2003. 88 s.

CURIE, L.A. Nomenclature in Evaluation of Analytical Methods Including Detection and Quantification Capabilities. (IUPAC Recommendation 1995). *Pure &Appl. Chem.*, 1995, vol. 67, no. 10, p. 1699-1723.

ČEZ. Jaderná elektrárna Temelín: základní informace. 1 vyd. České Budějovice: Herbiaprint spol. s. r. o., 1998. 68 s.

ČSN 75 7600: Jakost vod – Stanovení radionuklidů – Všeobecná ustanovení. Praha: Český normalizační institut, 2003.

DAVIS, W. Carbon 14 production in nuclear reactors. In *Management of Low-Level Radioactive Waste 1*. Oxford, Pergamon Press, 1979. p.151–191.

DE BIEVRE, P., TAYLOR, P. D. P. Table of the isotopic compositions of the elements. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, 1993, vol. 123, p. 149–166.

DEMPÍR J., DOHNAL L. Některé robustní postupy určení střední hodnoty a rozptýlení. souboru výsledků a jejich použití. *Klinická biochemie a metabolismus*, 2005, roč. 13, č. 3, s. 139–144.

DOHNAL, L. Desatero pro porovnání výsledků dvou metod. *Fons*, 2000, roč. 9, č. 3, s. 27–32.

DOHNAL, L. Chybějící a odlehlé hodnoty, robustní statistiky, neparametrické postupy. *Fons*, 1999b, roč. 8, č. 3, s. 42–49.

DOHNAL, L. Regrese a kalibrace. Fons, 1999a, roč. 8, č. 2, s. 25–31.

DUBOURG, M. Radiological impact of the carbon 14 in the decommissioning of gas cooled reactors. In *Safewaste 2000 – 2. International Conference, Nuclear Waste: From Research to Industrial Maturity. Montpellier (France) 2–4 Oct 2000.* Societe Francaise d'Energie Nucleaire Paris (France 2000 (v.1–2), 888, 2000, p. 847–855.

DUCHOSLAV, M. *Statistika pro biology* [online]. Olomouc: Univerzita Palackého v Olomouci, 2005. [cit. 2007–04–15]. Dostupné z: < http://botany.upol.cz >.

EISMA, R., VERMEULEN, A.T., BORG, K. ¹⁴CH₄ Emissions from Nuclear Power Plants in Northwestern Europe. *Radiocarbon*, 1995, vol. 37, no. 2, p. 475-483.

Environmental Health Criteria 25: Selected Radionuclides. Geneva: World Health Organitation; 1983, 491 p. ISBN 92 4 154085 0

FRIEDECKÝ, B., KRATOCHVÍLA, J. *Analytická kvalita v klinické laboratoři* [CD–ROM]. Pardubice: SEKK, 2002.

GRÚBEL, Š. a kol. *Správa o kontrole rádioaktivity v okolí SE – EMO za rok 2005*. AE Mochovce: Slovenské elektrárne, 2006. 149 s.

HAMMER, O., HARPER D. A. T. PAST [počítačový program]. Ver.1.67, 2007.

HAMMER, O., HARPER, D. A. T., RYAN P. D. PAST: Paleontological Statistics Software Package for Education and Data Analysis. *Palaeontologia Electronica*, 2001, vol. 4, no.1, s. 9. Dostupné z: http://palaeo-electronica.org/2001_1/past/issue1_01.htm.

HASZPRA, L., Carbon dioxide concentration measurements at a rural site in Hungary, Tellus, 1995, vol. 47 B, no. 1–2, p. 17–22. In BOSÁ, I. ¹⁴C a ²²²Rn v prírodných médiách a ich využitie pre štúdium transportu d'alších plynov. Bratislava, 2001. 37 s. Písomná práca k dizertačnej skúške na Fakultě matematiky, fyziky a informatiky Univerzity Komenského v Bratislavě. Školitel RNDr. Karol Holý, CSc.

HENDL, J. *Přehled statistických metod zpracování dat: analýza a metaanalýza dat.* 1.vyd. Praha: Portál, 2004, 583 s. ISBN 80–7178–820–1.

HLAVÁČOVÁ J. Chemie JE VVER 1000. ČEZ, 2003. 25 s.

Characterisation of C-14 generated by the nuclear power industry. Report EPRI TR-105715. Palo Alto, California, USA: Electrical Power Research Institute, 1995. 84 p.
International Commission on Radiological Protection. Age – dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 5. Compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. ICRP Publication 72. Oxford:Pergamon Press, 1996.

International Commission on Radiological Protection. *Report of the Task Group on Reference Man.* ICRP Publication 23. Oxford: Pergamon Press, 1975.

JABOR, A., ZÁMEČNÍK, M. STRAKA, L. (eds.). Statistické postupy v laboratorní medicíně. In *Encyklopedie laboratorní medicíny* [CD–ROM].Ver.01.00 Pardubice: SEKK, 2002. ISBN 80–238–9779–6.

Jaderná elektrárna Temelín, změny stavby. Dokumentace o hodnocení vlivů na životní prostředí. Brno: INVESTPROJEKT, 2000. 354 s.

Jaderná elektrárna Temelín. Předprovozní bezpečnostní zpráva, PpBZ 1, 2 revize 0. Praha: Ústav jaderného výzkumu Řež, divize ENERGOPROJEKT PRAHA (EGP), 2004.

Jaderný reaktor [online]. Wikimedia Foundation, 2001, last modified 20:50, 5 May 2007 [cit. 2007-05-07]. Dostupné z: http://cs.wikipedia.org/wiki/Jadern%C3%BD_reaktor#VVER.2FPWR >.

KLENER V. a kol. Hygiena záření. 1. vyd. Praha: Avicenum, 1988. 472 s.

KOC J., PÁVKOVÁ Z., MARTYKÁN M. Monitoring of the activation corrosion products activity fluctuation in the primary coolant of the VVER 1000 during start-ups and shutdowns. In XXVI. Dny radiační ochrany. Sborník rozšířených abstraktů. Luhačovice 1.–5. 11.2004. Praha: České vysoké učení technické v Praze, 2004. s. 149–156. ISBN 80–01–03076–8.

KOC, J., KULICH, V., POSPÍCHAL, J., VOKÁLEK J, HAK, J., FIALA, L. Bilancování radioaktivních výpustí z jaderných elektráren ČR a hodnocení jejich vlivu na okolí. In: XXVII. Days of radiation protection. Conference proceedings. Liptovsky Jan, Low Tatras, Slovakia, 28.11. – 02.12.2005. Bratislava: Society of Nuclear Medicine and Radiation Hygiene of Slovak Medical Association, 2005. s. 220-221. ISBN 80-88806-53-4.

KUBÁNKOVÁ, V., HENDL, J., *Statistika pro zdravotníky*. 1.vyd. Praha: Avicenum, 1986. 280 s.

KUNZ, C. Carbon-14 Discharge at Three Light-Water Reactors. *Health Physics*, July 1985, vol. 49, no. 1, p.25-35.

LEPŠ, J. *Biostatistika – návody ke cvičením* [online]. České Budějovice: Biologická fakulta Jihočeské univerzity v Českých Budějovicích, 2007 [cit. 2007–04–18]. Dostupné z: <http://botanika.bf.jcu.cz/suspa/vyuka/statistika.php>.

LEPŠ, J. *Biostatistika*. 1. vyd. České Budějovice: Jihočeská universita, 1996. 166 s. ISBN 80-7040-154-0.

LEPŠ, J., ŠMILAUER, P. *Mnohorozměrná analýza ekologických dat*. České Budějovice: Biologická fakulta Jihočeské univerzity v Českých Budějovicích, 2000. 102 s.

LEVIN, I., KROMER, B. The tropospheric ¹⁴CO₂ level in mid-latitudes of the northern hemisphere (1959–2003). *Radiocarbon*, 2004, vol. 46, no. 3, p. 1261-1272.

LEVIN, I., MUNNICH, K. O., WEISS, W. The effect of anthropogenic CO₂ and ${}^{14}C$ sources on the distribution of ${}^{14}C$ in the atmosphere. *Radiocarbon*, 1980, vol. 22, no. 2, p. 379–391.

Management of waste containing tritium and carbon-14. Technical reports series No. 421. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004, 109 s. ISBN 92-0-114303-6

MENČÍK, J. Simulační posuzování spolehlivosti při korelovaných veličinách. In *IV. ročník celostátní konference SPOLEHLIVOST KONSTRUKCÍ 23.–24.4.2003.* Ostrava: Dům techniky Ostrava, 2003. s. 151–157. ISBN 80–02–01551–7.

ODEHNAL, J. Provoz JE VVER 1000. ČEZ, 2003a. 44 s.

ODEHNAL, J. Údržba JE VVER 1000. ČEZ, 2003b. 14 s.

PECHA P., PECHOVÁ E. Program NORMAL na ocenění radiační zátěže obyvatelstva v okolí jaderných zařízení za normálního provozu, Praha: EGP, 2000. Arch.č. EGP 4104-6-990021.

PECHOVÁ, E. Odborná pomoc pro získání povolení k uvádění radionuklidů do životního prostředí. Praha: EGP, 2002. 42 s.

POPELKA, J. Informace pro studenty kurzů Statistika, Výpočetní technika a Základy výpočetní techniky [online]. Ústí nad Labem: Univerzita Jana Evangelisty Purkyně v Ústí nad Labem, 2006 [cit. 2007–04–15]. Dostupné z: < http://www.volny.cz/popelka_jan/statistika/dokumenty.htm >.

POVINEC, P., CHUDÝ, M., ŠIVO, A. Anthropogenic radiocarbon: past, present and future, *Radiocarbon*, 1986, vol. 28, no. 2, p. 668-672.

Program monitorování tvorby aktivovaných korozních produktů. Pracovní postup ev. č. 25.07.10.60 rev.01. ČEZ, 2002, 14 s.

Program monitorování výpustí z ETE. Metodika ev. č. 455 rev.02, ČEZ, 2005, 42 s.

ROUSSEL-DEBET, S., GONTIER, G., SÍDLET, F., FOURNIER, M. Distribution of carbon 14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2006, vol.87, p. 246-259.

ROYSTON, J.P. AS R94, Shapiro-Wilk normality test and P-value. *Applied Statistics*, 1995, vol. 44, no.4, p. 547-551.

Rozhodnutí SÚJB čj. 16920/2002 o vydání povolení k uvádění radionuklidů do životního prostředí, 2002.

ŘEZANKOVÁ, H., MAREK, L., VRABEC, M. *IASTAT – interaktivní učebnice statistiky* [online]. Praha:Vysoká škola ekonomická v Praze, 2001 [cit. 2007–04–01]. Dostupné z: < http://iastat.vse.cz>.

SHAPIRO, S.S., WILK, M.B. An analysis of variance test for normality (complete samples). *Biometrika*, 1965, vol. 52, no. 3/4, p.591-611.

Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1977 Report to the General Assembly, with annexes. United Nations sales publication E.77.IX.I. New York: United Nations, 1977. 725 p.

Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000 Report to the General Assembly, with annexes. Vol. I. Sources. United Nations sales publication E.00.IX.3. New York: United Nations, 2000. 654 p.

STUIVER M., POLACH H. A. Reporting of ¹⁴C data. *Radiocarbon*, 1977, vol. 19, no. 3, p. 355–363

SUESS, H. E. U. S. Geological Survey radiocarbon dates I. *Science*, 1954, no.120, s 467-473. In ŠIVO, A. *Využitie* ¹⁴C v environmentálnych štúdiach. Bratislava, 2006. 126 s. Dizertačná práca na Fakultě matematiky, fyziky a informatiky Univerzity Komenského v Bratislavě.

SUCHÁNEK, M. (ed.). *Kvalimetrie 6: stanovení nejistoty analytického měření*. 1. vyd. Praha: Eurachem-ČR, 1996. 95 s. ISBN 80–901868–1–5.

SVĚTLÍK, I., MICHÁLEK, V., TOMEŠ, M., TOMÁŠKOVÁ, L. Sledování uhlíku 14 a tritia ve složkách životního prostředí. In: *LiquiScint: LSC in Radiochemistry and Environmental Sciences. Prague, 17.-19.5.2004. Workshop Proceedings* [CD-ROM]. Prague: Czech Chemical Society, 2004a. [nestr.].

SVĚTLÍK, I., MIRCHY, R., MICHÁLEK, V., TOMÁŠKOVÁ, L. Results of atmospheric ¹⁴C monitoring and its comparison with other European stations. In: *XXVII. Days of radiation protection. Conference proceedings. Liptovsky Jan, Low Tatras, Slovakia, 28.11. – 02.12.2005.* Bratislava: Society of Nuclear Medicine and Radiation Hygiene of Slovak Medical Association, 2005. p. 220-221. ISBN 80-88806-53-4.

SVĚTLÍK, I., TOMÁŠKOVÁ, L. *Stanovení* ¹⁴*C v roztoku chladiva primárního okruhu*. 559/05. Výzkumná zpráva. Praha: ODZ ÚJF AV ČR, 2005. 14 s.

SVĚTLÍK, I., TOMEŠ, M., BRABCOVÁ, K., MICHÁLEK, V., TOMÁŠKOVÁ, L. Determination of C-14 in leaf samples from the vicinity of nuclear power plants. In *XXVI. Dny radiační ochrany. Sborník rozšířených abstraktů. Luhačovice 1.–5. 11.2004.* Praha: České vysoké učení technické v Praze, 2004b. s. 315–318. ISBN 80–01–03076–8.

SYNEK, V. *Materiály pro předměty chemie životního prostředí a statistika* [online]. Ústí nad Labem: Univerzita Jana Evangelisty Purkyně v Ústí nad Labem, 2006 [cit. 2006–04–19]. Dostupné z: < http://fzp.ujep.cz/~synek/>.

Systém monitorování zdravotního stavu obyvatelstva České republiky ve vztahu k životnímu prostředí. Souhrnná zpráva za rok 2005 [online]. Praha: Státní zdravotní ústav Praha, 2006 [cit. 2007–04–12.]. Dostupné z: http://www.szu.cz/chzp/reporty.htm>.

SZANTO, Z., SVINGOR, E., PINTER, T. Concentration of beta emitters in primary water, stack air, nuclear waste and environment of Middle European Nuclear Power Plants. In *Proceedings of 4th Regional Meeting Nuclear Energy in Central Europe*. 1997. p. 153–160.

ŠEDA, J., MUSÍLEK, L., PETR, I. SABOL, J., MELICHAR, Z. Dozimetrie ionizujícího záření. Praha: SNTL, 1983, 418 s.

ŠIVO, A. *Využitie* ${}^{14}C$ *v environmentálnych štúdiach*. Bratislava, 2006. 126 s. Dizertačná práca na Fakultě matematiky, fyziky a informatiky Univerzity Komenského v Bratislavě.

ŠVEC, J., CHMELOVÁ, J., KORBELÍK, K. *Radioekologie pro radiologické asistenty*. 1. vyd. Ostrava: Ostravská univerzita v Ostravě. Zdravotně sociální fakulta, 2006, 102 s. ISBN 80–7368–219–2.

TITLEY, J. G., CABIANCA, T., LAWSON, G., MOBBS, S. F., SIMMONDS, J. R. *Improved global dispersion models for iodine-129 and carbon-14*. EUR 15880 EN, 1995

ULLMANN, V. Jaderná fyzika a fyzika ionizujícího záření [online]. Ostrava: 2002 [cit. 2007–03–31]. Dostupné z: http://astroNuklFyzika.cz/Fyzika-NuklMed.htm.

VERES, M., HERTELENDI, E., UCHRIN, G., CSABA, E., BARNABAS, I., ORMAI, P., VOLENT, G., FUTO, I. Concentration of radiocarbon and its chemical forms in gaseous effluents, environmental air, nuclear waste and primary water of a pressurized water reactor power plant in Hungary. *Radiocarbon*, 1995, vol. 37, no. 2, p. 497–504.

VESELÝ, K., PETR, I., ŠEBESTA, F. Stanovení nízkých aktivit radionuklidů: vybrané postupy a aplikace. Praha: Ústřední informační středisko pro jaderný program, 1986. 84 s.

Vyhláška Státního úřadu pro jadernou bezpečnost č. 307/2002 Sb. o radiační ochraně. Sbírka zákonů 2002, částka 113. 2002.

Výsledky monitorování radiační situace v okolí jaderné elektrárny Temelín za rok 2000. *ETE/4540/5/2000*. Jaderná elektrárna Temelín: ČEZ, 2000.

Výsledky monitorování výpustí a radiační situace v okolí Jaderné elektrárny Temelín za rok 2001. ETE/4540/5/2001. Jaderná elektrárna Temelín: ČEZ, 2001.

Výsledky monitorování výpustí a radiační situace v okolí Jaderné elektrárny Temelín za rok 2002. ETE/1560/5/2002. Jaderná elektrárna Temelín: ČEZ, 2002.

Výsledky monitorování výpustí a radiační situace v okolí Jaderné elektrárny Temelín za rok 2003. ETE/7520/5/2003. Jaderná elektrárna Temelín: ČEZ, 2003

Výsledky monitorování výpustí a radiační situace v okolí Jaderné elektrárny Temelín za rok 2004. ETE/7520/5/2004. Jaderná elektrárna Temelín: ČEZ, 2004.

Výsledky monitorování výpustí a radiační situace v okolí Jaderné elektrárny Temelín za rok 2005. ETE/V5020200/5/2005. Jaderná elektrárna Temelín: ČEZ, 2005.

Výsledky monitorování výpustí a radiační situace v okolí Jaderné elektrárny Temelín za rok 2006. ETE/V5020200/5/2006. Jaderná elektrárna Temelín: ČEZ, 2006.

YOSHIOKA, K. KyPlot – A User-oriented Tool for Statistical Data Analysis and Visualization. *Computational Statistics*, 2002, vol. 17, no. 3, p. 25–437.

YOSHIOKA, K. KyPlot [počítačový program]. Ver.2.0 beta 15 (32bit). Japonsko. 2001.

Zařízení pro vzorkování ³H a ¹⁴C v plynných výpustích HVB Jaderné elektrárny Temelín: fyzikální projekt. CHEMCOMEX Praha, 1999. 27 s. Arch.č. 30–7–99150. ZMÍTKO, M. Primary Coolant Technology and Experience in VVER units. In *Proceedings of the 14th International Conference on the Properties of Water and Steam August 29 – September 3, 2004.* Edit. by Masaru Nakahara, Nobuyuki Matubayasi, Masakatsu Ueno, Kenji Yasuoka and Koichi Watanabe, 2004, p. 539–544.

Zpráva o radiační situaci na území České republiky v roce 2003 [online]. Praha: Státní ústav radiační ochrany, 2004 [2007–04–16]. Dostupné z: <www.suro.cz/cz/publikace>.

ZVÁRA, K. Statistika v antropologii. In *Antropologie: příručka pro studium kostry*. 1 vyd. Praha: Národní muzeum, 1999. s 433–479.

8 KLÍČOVÁ SLOVA

 $^{14}\mathrm{C}$ – $^{14}\mathrm{CO}_2$ – $^{14}\mathrm{C}_x\mathrm{H}_y$ – dávková zátěž – radiotoxicita – radionuklid – lehkovodní tlakový reaktor – plynné výpusti radionuklidů

PŘÍLOHY

PŘÍLOHA A



Obr. A.1 Odběrové zařízení V3H14C, model K0220-02, odběrové místo HVB1.



Obr. A.2 Kapalinový scintilační spektrometr Tricarb 3170 TR/SL používaný pro měření aktivit ¹⁴C ve zpracovaných vzorcích.