

## DINAMIKA KRETANJA $^{137}\text{Cs}$ I $^{40}\text{K}$ NA STABLIMA JELE (*Abies alba*) NA SLJEMENU

DYNAMICS OF  $^{137}\text{Cs}$  AND  $^{40}\text{K}$  MOVEMENT IN SILVER FIR TREES ON SLJEME MOUNTAIN

Marina POPIJAČ<sup>1</sup>, Ivan SELETKOVIĆ<sup>2</sup>, Matija VOLNER<sup>3</sup>,  
Ivana LOVRENČIĆ<sup>4</sup>, Delko BARIŠIĆ<sup>5</sup>, Nikola KEZIĆ<sup>6</sup>

**SAŽETAK:** Ovim se radom želi doprinijeti spoznaji o dinamici kretanja i sudbini modelnog zagadenja šumskog ekosustava, pa je stoga analizirano kretanje  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  u različitim dijelovima stabala jele (*Abies alba*) sa Sljemenu, u razdoblju od 1999. do 2000. godine. Promatrani su vršni izbojci na grančicama obične jеле, odnosno iglice, kora i srčika. Aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  određena je gamaspektrometrijskom metodom mjerjenjima na HPGe detektorskom sustavu. U svim analiziranim uzorcima najveće aktivnosti  $^{40}\text{K}$  i  $^{137}\text{Cs}$  pronađene su u kori vršnih izbojaka, odnosno u najmlađim iglicama. Porast aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  u iglicama, od starijih prema mlađim u vršnim dijelovima grana jеле, nema linearni trend, no sasvim sigurno ukazuje na činjenicu da se oba radionuklida akumuliraju u najmlađim dijelovima izbojaka. Usporedili smo dinamiku kretanja  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  po mjesecima u iglicama, kori i srčici izraslima u posljednje tri godine. Aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  pokazuju rastući trend, počevši od starijih dijelova kore, iglica i srčike prema mlađima, u svim analiziranim uzorcima. Isto tako možemo reći da je aktivnost oba promatrana radionuklida najveća u kori stabala u odnosu na ostale analizirane dijelove.

**Ključne riječi:**  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ , *Abies alba*, Sljeme, iglice, kora, srčika

### UVOD – Introduction

Radioaktivni izotop cezija –  $^{137}\text{Cs}$  prvi se put pojavio u okolišu u znatnjim količinama nakon izvođenja atmosferskih nuklearnih pokusa, koji su intenzivno vršeni tijekom pedesetih i šezdesetih godina, a posljednja atmosferska nuklearna eksplozija bila je 16. listopada 1980. godine (UNSCEAR, 1993; FAS, 2002.). Zadnja velika količina  $^{137}\text{Cs}$  otpuštena je u atmosferu

tijekom velike nesreće u Chernobylu 1986. godine. Procesima suhog ili mokrog (oborinama) taloženja,  $^{137}\text{Cs}$  je deponiran na površinu Zemlje u relativno kratkom razdoblju te je stoga i tlo na području Republike Hrvatske kontaminirano relativno nehomogeno (Barišić et al. 1999). Dio istaloženog cezija relativno je brzo dospio u najpliće slojeve tala, a u dublje slojeve migrirao je vrlo sporo zahvaljujući djelovanju površinskih procijednih voda (Filipović et al. 1991, Barišić et al. 1999). Migracija  $^{137}\text{Cs}$  u dublje slojeve kontrolirana je adsorpcijskim procesima njegovog vezivanja na organski materijal i mineralne čestice tala. Relativno velika količina minerala glina u tlima rezultira brzim i irreverzibilnim vezanjem cezija u tlu (Cremers et al., 1988.). Cezij je kao i drugi kationi dostupan biljkama preko korijena. Biljke ga uzimaju iz tala, te na taj način može iz tala migrirati i u gornje dijelove biljaka (up take). Migracija ovisi o biljnoj fiziologiji

<sup>1</sup> Mr. sc. Marina Popijač, dipl. ing. šum., Hrvatske šume d.o.o., Vukotinovićeva 2, 10 000 Zagreb

<sup>2</sup> Mr. sc. Ivan Seletković, dipl. ing. šum., Šumarski institut Jastrebarsko, Cvjetno naselje 41, 10 450 Jastrebarsko

<sup>3</sup> Matija Volner, dipl. ing. šum., Nacionalni park Plitvička jezera, Mukinje P7, 53 231 Plitvička jezera

<sup>4</sup> Ivanka Lovrenčić, dipl. geolog, Institut Ruder Bošković, Bijenička cesta 54, 10 002 Zagreb

<sup>5</sup> Dr. sc. Delko Barišić, Institut Ruder Bošković, Bijenička cesta 54, 10 002 Zagreb

<sup>6</sup> Prof. dr.sc. Nikola Kezić, Agronomski fakultet Sveučilišta u Zagrebu, Svetosimunska 25, 10 000 Zagreb

odnosno vrsti biljke, adsorpcijskim procesima u tlu, sastavu tla, vrsti tla, lateralnim migracijama cezija itd. Transfer  $^{137}\text{Cs}$  iz tala u biljni materijal obično se izražava kao transfer faktor;  $T_f$  ( $^{137}\text{Cs}$ ), pri čemu  $T_f$  ( $^{137}\text{Cs}$ ) predstavlja omjer aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u bilnjom materijalu (Bq/kg) i pripadnom tlu (Bq/kg) na kojem biljka raste. Teškoće pri usporedbi transfer faktora predstavlja činjenica da različiti autori za izračun transfer faktora uzimaju količinu  $^{137}\text{Cs}$  u tlu s međusobno različitim dubina (Assmann-Werthmüller et al, 1991: 0–15 cm; Jackson 1989: 0–4 cm; Antonopoulos et al, 1990: 0–20 cm; Coughtrey et al, 1989; 0–30 cm; Liven et al, 1991; 0–10 cm). Uočeni su široki rasponi aktivnosti cezija u različitim promatranim segmentima vertikalnih profila tala, no za transfer cezija iz tala u biljke bitna je količina slobodnog (neadsorbiranog ili slabo vezanog) cezija u zoni u kojoj je korijeni sustav najrazvijeniji.

Iako su njihove fiziološke osobine različite, pojedine biljne vrste pokazale su se kao dobri indikatori kontaminacije tala cezijem. U različitim tipovima tala adsorpcija  $^{137}\text{Cs}$  je različita ovisno o pH vrijednostima, mineralnom sastavu i udjelu organske tvari (koji također variraju u tlima u širokim rasponima), a što sve ukazuje na kompleksnost proučavanja procesa transfera  $^{137}\text{Cs}$  iz tla u biljku. Važno je naglasiti da se danas fiziološka svojstva biljaka i drveća moraju promatrati u svjetlu novih šumskih šteta koje su nastale zbog one-

čišćenja atmosfere i koje se očituju na tri različita načina: a) izravnim utjecajem atmosferskih polutanata na lišće i asimilaciju, b) unosom tvari u tlo suhom i mokrom depozicijom i njihovim utjecajem na fiziološke procese u podzemnim i nadzemnim dijelovima šumskog drveća, i c) posrednom štetom zbog promjene klime i povećane osjetljivosti drveća na ekstremne klimatske, edafске i biotske prilike (G lavač, 2003).

Prisutnost  $^{137}\text{Cs}$  u tlima na području Republike Hrvatske posljedica je nuklearnih pokusa u svijetu i radioaktivnih oborina nakon nesreće u nuklearnoj elektrani u Chernobylu (Barišić et al, 1987, Barišić et al, 1991; Lokobauer, 1988; Marović, 1990). Procjenjuje se da je kontaminacija područja Republike Hrvatske prije nesreće u Chernobylu bila približno homogena. Odnos između najviše i najmanje kontaminiranog područja iznosio je 5,8 : 1, što je za red veličine manje od odnosa nakon nesreće u Chernobyl-u. U Zagrebu i okolicu 1986. godine izmjerena je aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  od 6,3 kBq/m<sup>2</sup>. Ta aktivnost bila je oko 4 130 puta veća od aktivnosti prethodnih godina, odnosno oko 3 000 puta veća od aktivnosti izmjerena u 1995. godini (Lokobauer et al, 1998). Količina radioaktivnosti koja je putem radioaktivnih padalina kontaminirala područje Republike Hrvatske procijenjena je na  $5,2 \times 10^{15}$  Bq, što je oko 0,28 % ukupne aktivnosti otpuštene iz reaktora u Chernobylu.

### Fizikalno-kemijska i biološka svojstva $^{137}\text{Cs}$

Cezij, poznat od 1882. godine (Petrović, Đurić, 1981) alkalni je metal, rednog broja 55, relativne atomske mase 132,91. Po električnim, kemijskim, fizikalnim i biološkim svojstvima sličan je kaliju. Keminski je vrlo aktivan, dobro topiv u vodi, a u prirodi se uvijek javlja u spojevima klorida, sulfata, karbonata, kromata, oksalata i fosfata. Od 23 poznata izotopa cezija samo je  $^{133}\text{Cs}$  stabilan (Bureau of Radiological Health, 1970). Zbog značajnog fizijskog doprinosa i fizičkih svojstava najvažniji su radioaktivni izotopi cezija  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ , i  $^{137}\text{Cs}$ . Vrijeme poluraspada  $^{137}\text{Cs}$

je 30,1 godina, te se stoga njegova prisutnost u okolišu može pratiti još desetljećima.

Cezij se ponaša i raspodjeljuje u organizmu slično kao kalij (Baratta, 1994). Stoga se ceziju pripisuju i slična fiziološka svojstva kao i kaliju. Međutim, kasnija su istraživanja potvrđila veću sličnost rubidija kaliju u biološkim procesima nego što ga ima cezij (Reiman, 1956). Prisutnost stabilnog cezija utvrđena je u biljnim i životinjskim tkivima. U usporedbi s drugim elementima u tragovima, cezij je najmanje toksičan.

### Cezij u tlu i biljkama

Tlo je glavno spremište  $^{137}\text{Cs}$ . Migracija cezija u tlu ponajprije ovisi o vrsti tla. Najveći dio aktivnosti koncentriran je u površinskom sloju tla do nekoliko centimetara dubine (Baratta, 1994; Wegner, 1996; Barišić et al, 1999). Brzina vertikalne migracije cezija u neobrađivanom tlu ovisi o više čimbenika, tj. vrsti tla, mineralnom sastavu tla, pH, sadržaju organske tvari, hidrogeološkim procesima, geokemijskim procesima itd. (Filipović-Vinceković et al, 1991; Shad et al, 1994, Barišić et al, 1999). U ne-

kim vrstama tala vertikalna migracija cezija kreće se od 0,2 do 0,6 cm/godini (Rosen et al, 1999) zbog čvrstog vezanja za minerale ili imobilizaciju za organizme tla, osobito njegovu mikrofloru (Bunzl et al, 1995). U šumskom tlu glavni izvor  $^{137}\text{Cs}$  je površinski organski sloj (Kruyts, Delvaux, 2002).

Biljke unose mikrokonstituente, pa tako i radionuklide, na dva načina: posredno preko korijena iz tala i izravnim taloženjem radionuklida na listu ili cvijetu (Baratta, 1994).  $^{137}\text{Cs}$  je čvrsto vezan za minerale tla

te je i njegova resorpcija kroz korijen biljke općenito slaba (WHO, 1987; Kraljević, 1989) i pretežno je proporcionalna koncentraciji u tlu (Shaw, Bell, 1989). Unatoč tomu postoje biljke u kojima koncentracija  $^{137}\text{Cs}$  nije sukladna koncentraciji u tlu kao što su npr. gljive, mahovine i lišajevi (Heinrich et al, 1999; Kirchner, Daillant, 2002; Gaso et al, 1998). Prelazak  $^{137}\text{Cs}$  iz tla u biljke ne ovisi samo o njegovoj koncentraciji u tlu već i o drugim čimbenicima. Tako je npr. unos cezija iz tla u biljku obrnuto proporcionalan sadržaju kalija u tlu (Eisenbud, 1987) zbog kompe-

titivnih učinaka (homologni elementi 1A skupine). Općenito biljke koje rastu na kiselim i organskim tvarima bogatim tlima, sadrže znatno više cezija nego biljke koje rastu na tlima obogaćenim mineralima (WHO, 1987). Glavni put ulaska cezija u biljku tijekom radioaktivne kontaminacije nekog područja je kroz lišće, pa je stoga i njegova količina u biljci sukladna količini radioaktivnih oborina. Zbog toga je folijarna adsorpcija glavni put unosa  $^{137}\text{Cs}$  za vrijeme kontaminacije u prehrabeni lanac (WHO, 1987).

## Fizikalno-kemijska i biološka svojstva $^{40}\text{K}$

Fiziološka uloga kalija, kao neophodnog elementa biljne ishrane, kasno je rasvijetljena obzirom da kalij nije građevni element niti jednog spoja žive tvari. Kalij je alkalni metal (bioelement) rednog broja 19, relativne atomske mase 39,102, smješten u istoj skupini periodičnog sustava s Na, Cs, Rb i Li. Kalij je otkrio H. Davy 1807. godine (Petrović, Đurić, 1981). U prirodi kalij dolazi kao smjesa izotopa  $^{39}\text{K}$  (93,08 %  $\pm$  0,09 %),  $^{40}\text{K}$  (0,0119 %  $\pm$  0,0001 %) i  $^{41}\text{K}$  (6,9%  $\pm$  0,09 %), a od svih izotopa kalija samo je  $^{40}\text{K}$  radioaktivan, tj. prirodni je primopredajni radionuklid.  $^{40}\text{K}$  predstavlja jedan od najrasprostranjenijih prirodnih radioaktivnih elemenata, jer čini oko 1 % od ukupnog broja svih atoma koji formiraju Zemljinu koru (Petrović, Đurić, 1981).

Maseni udio kalija u Zemljinoj kori procjenjuje se na 2,59 % ili 25,9 kg/t (Filipović, Lipanović, 1988), a tlu je zastupljen s 1 – 3,6 % (Petrović et al, 1981). Kalij izdvojen iz prirodnih soli, minerala, tkiva organizama uvijek ima stalni izotopni sustav, pa se može reći da aktivnost prirodnog kalija iznosi oko 31,6 Bq/gK (Eisenbud, 1987). Koncentracije  $^{40}\text{K}$  u tlima Republike Hrvatske kreću se od oko 140 Bq/kg do oko 710 Bq/kg (UNSCEAR, 2000). Kad dospije u živi organizam, kalij se ravnomjerno raspoređuje, a kako je dominantan radioaktivni element, najveći dio unutarnjeg ozračivanja koje dolazi od prirodnih izvora radioaktivnosti potječe upravo od njega (UNSCEAR, 2000).

## Kalij u tlu i biljkama

U tlu i biljkama nalazi se samo kao jednovalentni kation ( $\text{K}^+$ ) s reduksijskim svojstvima. Ne ulazi u sastav organske tvari, već se labavo veže pretežito na proteine. Samo se mobilni kalij (K na vanjskim površinama minerala gline) može smatrati potpuno pristupačnim za ishranu bilja, dok fiksirani oblik sporo nadoknađuje manjak u izmjenjivoj fazi, ali se može i nepovratno fiksirati. Danas se smatra kako se uloga kalija

može razvrstati u dvije osnovne funkcije: aktivacija enzima (aktivacija ATPaze, skrob sintetaze, i dr.) i regulacija permeabilnosti živih membrana. Kalij aktivira ili modulira rad 80-ak enzima. To je svojstvo povezano s malom veličinom atoma K te, slično Rb, može mijenjati konformaciju proteina i oslobođati aktivna mjesta na enzimima, te tako stimulirati vezu s odgovarajućim supstratima.

## Obična jela (*Abies alba*)

### Morfologija i biologija obične jеле

Obična jela (*Abies alba*) je u prosjeku do 40 (-60) m visoko drvo s promjerom debla do preko 2 m. Korijenov sustav osim snažnoga bočnog korijenja ima i kratki središnji korijen, koji prodire relativno duboko u tlo. Kora je na mlađim stablima sivkasta, glatka, a u starijoj dobi potamni, ispuca uzdužno i poprijeko. Krošnja je piramidalna ili valjkasta, u starosti pri vrhu zaravnjena (kao odsječena, tanjurasta), a grane se nalaze u pršljennima. Iglice su plosnate, s gornje strane tamnozelene, sjajne, a s donje strane s dvije paralelne bjelkaste pruge puči, duge su do 3 cm, široke do 3 mm, a ostaju na granama do osam, a ponekad i više godina.

Obična jela je jednodomna i anemofilna vrsta, dobro podnosi zasjenu te u zastarčenome obliku može živjeti i do 200 godina. Neotorna je oscilacije temperature, te dosta trpi od mraza i suše. Oštećenost četinjača (obične jеле i smreke) bitno je veća od oštećenosti listića i kreće se u nešto većem rasponu, od 40,7 % (2002. godine) do 47,2 % (2001. godine), (Seletković, Potočić, 2004).

### Raspšrostranjenost obične jеле u Hrvatskoj

Areal jelovih šuma u Hrvatskoj ima izrazito razveden reljef. Glavninom svoga areala u Hrvatskoj vezana je ponajprije na Dinaride – Veliku i Malu Kapelu, veći dio Velebita, sjeverne padine Dinare i Kamešnice, te s

jednom danas izoliranom enklavom na sjevernim padinama Biokova. Na čitavom tom prostoru jela svoju donju granicu na priobalnom grebenu ima negdje oko 900–1000 m n. m., a na kopnenoj padini između 650 m na sjeveru i 850 m na jugu. Gornju granicu svoga areala jela u Hrvatskoj postiže između 1100 i 1400 m n. m. Jela u Hrvatskoj raste i na nekoliko izoliranih gora, što se pružaju između Drave i Save. To su Macelj, Medvednica, Psunj i Papuk, gdje izgrađuje šumske sastojine te Strahinjčica, gdje danas susrećemo samo pojedina jelova stabla (Trinajstić, 2001). Glavni diferencirajući čimbenik u pedosferi jelovih šuma na tom prostoru je reljef (Pernar, 2001).

Utvrđeno je da su mikroklimatska obilježja staništa i sastojina bukovo-jelovih šuma različita prema pojedinim gorskim masivima, a hidrološke prilike u panonskom području Hrvatske vrlo su povoljne, jer su vodenih tokova manjih i većih kapaciteta vrlo brojni (Medve-

dović, 2001). Nastavljaju se na snažno izražen vegetacijski pojas gorskih bukovih šuma, pa se zbog manjih površina u većem dijelu rasprostranjenosti gospodariće kao s jednodobnim sastojinama. Tek u novije vrijeme propisano i u njima obvezno preborno gospodarenje, čime se u prvom redu daje prednost međusobnim odnosima i svojstvima glavnih vrsta drveća, odnosno jele i bukve. Bukovo-jelova šuma na Medvednici zauzima znatne površine. Na južnim padinama dolazi na vršnoj zoni Sljemena od 800 do 1000 m nadmorske visine. Na sjevernim padinama jela je u optimumu svojega areala te prevladava. Ona se ovdje od vrha spušta vrlo nisko do 250 m (iznad sela Gornja Bistra). Te šume pripadaju amfipanonskoj vegetacijskoj zoni euro-altimontanskog visinskog pojasa. Velik udio i izrazita prevlast vrsta reda *Fagetalia* pokazuje da je riječ o zajednici unutar te sistematike koja još uvijek zadržava neke vrste ilirskoga flornog elementa (Vučelić, 2001).

## MATERIJAL I METODE ISTRAŽIVANJA – Material and methods of the research

Ovim istraživanjem željeli smo utvrditi dinamiku opterećenosti stabala obične jеле cezijem. Tijekom 1999. i 2000. godine su uzimani uzorci jelovog materijala te je mjerena aktivnost cezija i kalija u iglicama, kori i srčici na izbojcima grana u segmentima izraslim 1997., 1998. i 1999. godine. Uzorkovana stabla jеле odabrana su na Sljemenu kod planinarskog doma Hunjka. Ukupno je odabранo petnaest stabala koja smo pratili cijelo razdoblje istraživanja jednom mjesечно. Uzorkovane su iglice, kora i srčika uvijek istih stabala koje smo obilježili, a uzorci su uzimani ravnomjerno sa svakog stabla kako ih ne bismo oštetili. Nakon laboratorijske pripreme i obrade, analizirana je dinamika kretanja cezija i kalija u odabranim uzorcima za svaki pojedini mjesec u segmentima izraslim u razdoblju od tri godine. Neposredno prije pripreme uzorka za mjerjenje radioaktivnosti, sakupljeni uzorci su usitnjeni i sušeni, te stavljeni u plastične posudice volumena 125 cm<sup>3</sup> i hermetički zatvoreni.

Analiza aktivnosti <sup>137</sup>Cs i <sup>40</sup>K u uzorcima provedena je u Laboratoriju za radioekologiju Zavoda za istraživanja mora i okoliša Instituta Ruđer Bošković u Zagrebu, gamaspektrometrijskom metodom s pomoću HPGe

poluvodičkog detektorskog sustava povezanog s "Camberra" 4096 MCA kanalnim analizatorom. Gamaspektrometrijska metoda temelji se na činjenici da se gama emiteri mogu identificirati na temelju karakterističnih energija gama zračenja. Za detekciju gama zračenja najpovoljniji su čvrsti poluvodički detektori. Poluvodički detektori temelje se na promjeni vodljivosti kristala (Si ili Ge) pri prolazu ionizacijskog zračenja. Nakon interakcije zračenja i kristala nastaje električni naboј (elektroni i ostatak kristala ili tzv. šupljina) koji putuje na odgovarajuće metalne ploče spojene na izvor visokog napona. Nastali električni impuls prevodi se u naponski impuls koji je proporcionalan energiji zračenja. Za konačnu interpretaciju naponski impulsi još se pojačavaju, analiziraju i registriraju pomoću višekanalnog analizatora. Podaci iz analizatora (energijski spektar) pohranjuju se u memorijске jedinice ili se pak obraduju određenim računalnim programima. Aktivnosti <sup>40</sup>K određene su iz foto-vrha na energiji od 1460,75 keV-a, a aktivnost <sup>137</sup>Cs je određivana preko foto-vrha na energiji od 661,6 keV-a. Spektri su snimani 80 000 sekundi, a za obradu je korišten Genie 2000 PC "Camberra" softverski program.

## REZULTATI I DISKUSIJA – Results and discussions

Za dobivanje random – uzorka, vrlo pažljivo i ravnomjerno sa svakog izabranog i obilježenog stabla (da ne bismo oštetili stabla i njihovu fiziološku i biološku funkciju) četrnaest uzastopnih mjeseci tijekom dvije godine uzimani su uzorci iglica, kore i srčike. Ovim istraživanjem željeli smo utvrditi dinamiku kretanja <sup>137</sup>Cs i njegovog homologa <sup>40</sup>K za svaki pojedini mjesec u godini u uzorcima vršnih segmenata grančica jеле starih do tri godine.

## REZULTATI I DISKUSIJA – Results and discussions

Izmjereni rezultati prikazani su u tablicama 1. i 2.

U tablicama 1. i 2. prikazane su vrijednosti aktivnosti <sup>40</sup>K i <sup>137</sup>Cs obzirom na starost uzorka iglica, kore i srčike. Promjena aktivnosti <sup>40</sup>K i <sup>137</sup>Cs s obzirom na starost segmenta više je izražena u kori i srčici. U iglicama se aktivnost <sup>40</sup>K i <sup>137</sup>Cs bitno ne mijenja u odnosu na starost segmenta na kojem je uzorkovana. Rezultati mjerjenja ukazuju na dinamiku kretanja <sup>40</sup>K grafikon 2.

Tablica 1. Dinamika kretanja  $^{40}\text{K}$ Table 1 Dynamics of  $^{40}\text{K}$  Movement

Datum uzorkovanja	$^{40}\text{K}$								
	1997			1998.			1999.		
	Iglice	Kora	Srčika	Iglice	Kora	Srčika	Iglice	Kora	Srčika
02.03.1999.	182,7	346,9	96	203,6	432,3	137,7			
05.04.1999.	181,1	355	47,7	214,8	386	155,3			
04.05.1999.	172,5	313,4	99,2	211,3	392	223,2			
04.06.1999.	148,9	283,7	54,4	180,6	421	80	297,6	388,7	388,7
05.07.1999.	177,2	340,6	59,1	191	389,1	94,1	230,8	432,8	432,8
16.08.1999.	227,7	324,5	62,4	247,4	466,4	125,3	229,5	602,3	165,8
10.09.1999.	245,1	394,1	66,7	254,6	455,5	83,2	235,8	555,2	225,7
15.10.1999.	242,2	347,8	58,9	246,2	317,5	105,6	239,2	474,1	281,5
13.11.1999.	241,5	344	56,2	262,4	414,5	85,1	247	509,2	223,1
16.12.1999.	184,8	307,2	47,4	186,9	402,1	83,3	183,5	441,2	143,6
11.01.2000.	195,3	305,3	55	201,5	393,3	71,8	192,9	432,5	154,7
04.02.2000.	167,8	288,9	46,5	183,1	355,4	56,7	157,6	410,1	148,9
01.03.2000.	167,5	305,2	46,7	180	357,7	59,8	175,9	435,8	106,3
03.04.2000.	174	267,6	38,1	172,3	359,7	57,9	166,2	507,6	102,5

\* Na najmlađim izdancima kora i srčika nisu se mogli razdvojiti te su stoga mjereni zajedno

Tablica 2. Dinamika kretanja  $^{137}\text{Cs}$ Table 2 Dynamics of  $^{137}\text{Cs}$  Movement

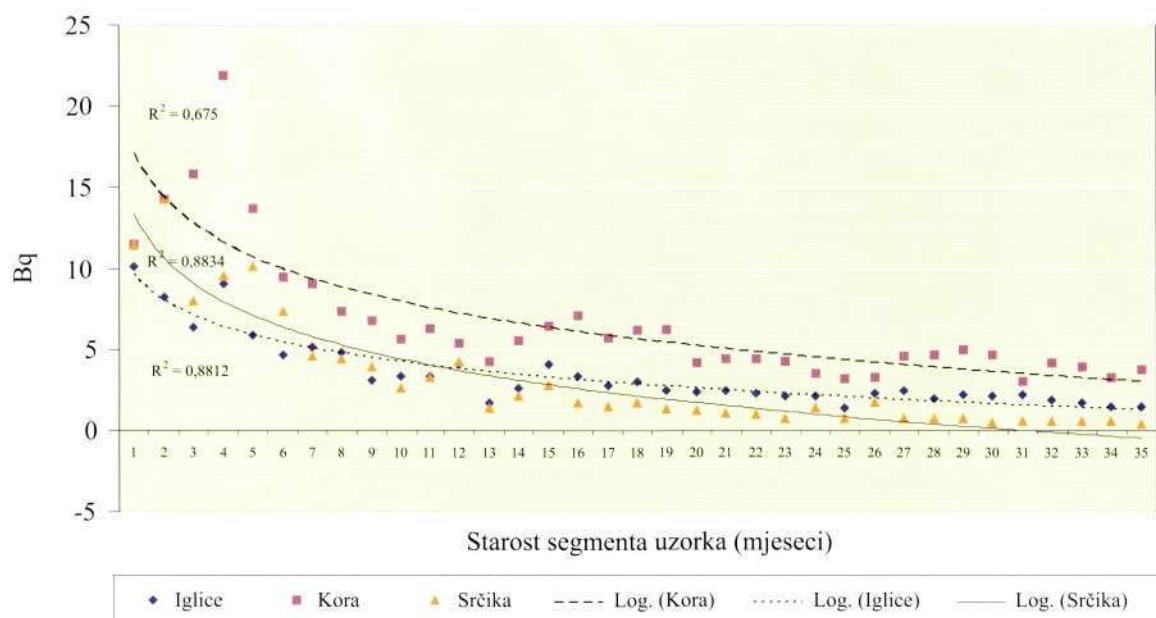
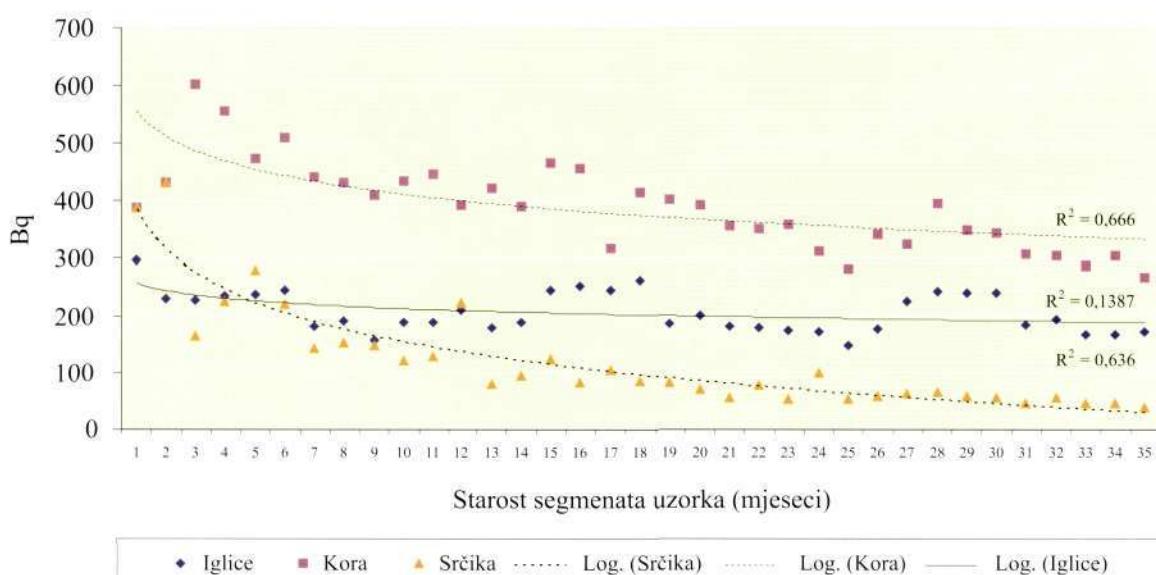
Datum uzorkovanja	$^{137}\text{C}$								
	1997			1998.			1999.		
	Iglice	Kora	Srčika	Iglice	Kora	Srčika	Iglice	Kora	Srčika
02.03.1999.	2,3	4,5	1,1	3	4,1	2			
05.04.1999.	2,4	4	0,7	3,5	6,3	4,1			
04.05.1999.	2,1	3,5	1,4	4,1	5,4	4,3			
04.06.1999.	1,4	3,2	0,7	1,7	4,3	1,4	10,2	11,5	11,5
05.07.1999.	2,3	3,3	1,7	2,6	5,6	2,1	8,3	14,3	14,3
16.08.1999.	2,5	4,6	0,7	4,1	6,5	2,8	6,4	15,8	8
10.09.1999.	2	4,7	0,7	3,4	7,1	1,7	9,1	21,9	9,6
15.10.1999.	2,2	5	0,7	2,8	5,7	1,5	5,9	13,7	10,2
13.11.1999.	2,1	4,7	0,5	3	6,2	1,7	4,7	9,5	7,4
16.12.1999.	2,2	3	0,6	2,5	6,2	1,3	5,2	9,1	4,6
11.01.2000.	1,9	4,2	0,6	2,4	4,2	1,2	4,8	7,4	4,4
04.02.2000.	1,7	3,9	0,6	2,5	4,4	1,1	3,1	6,8	3,9
01.03.2000.	1,5	3,3	0,6	2,3	4,3	0,9	3,8	7,2	3,3
03.04.2000.	1,5	3,8	0,4	1,9	4,5	0,8	3,2	6,4	2,4

\* Na najmlađim izdancima kora i srčika nisu se mogli razdvojiti te su stoga mjereni zajedno

i  $^{137}\text{Cs}$  grafikon 1. Vrlo jasno vidimo da se aktivnost  $^{40}\text{K}$  i  $^{137}\text{Cs}$  mijenja u odnosu na starost segmenta. Važno je primijetiti da je aktivnost  $^{40}\text{K}$  i  $^{137}\text{Cs}$  uvek jače izražena u najmlađim dijelovima grana. U tablicama 1. i 2. vidljivo je da je aktivnost  $^{40}\text{K}$  i  $^{137}\text{Cs}$  u uzorcima kore bila najviša u lipnju i srpnju, da bi se u kolovozu smanjila na prijašnju vrijednost.

Logaritamska funkcija najbolje izračunava trend aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  s obzirom na starost uzorka kore, srčike i iglice. Koeficijent determinacije za vrijednost aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$ ,  $R^2$  koji predstavlja omjer protumače-

nih i ukupnih odstupanja u našem istraživanju za srčiku je  $R^2 = 0,8834$ ; koru  $R^2 = 0,675$  i iglice  $R^2 = 0,8812$ . Vrijednosti koeficijenta za vrijednosti aktivnosti  $^{40}\text{K}$  za srčiku je  $R^2 = 0,636$ ; koru  $R^2 = 0,666$  i iglice  $R^2 = 0,1387$ . Najveća aktivnost kalija je u uzorku kore (602,3 Bq/kg) u kolovozu 1999. godine, a poslije ona pada kako pada i fiziološka aktivnost grana. Obzirom da tek izrasli najmlađi uzorci kore i srčike uzeti u lipnju i srpnju 1999. godine nisu mogli biti odvojeni, mjenjeni su kao jedinstveni uzorak (kora i srčika zajedno).

Grafikon 1. Dinamika kretanja  $^{137}\text{Cs}$  u segmentima uzorka kore, srčike i iglica obične jeleGrafikon 2. Dinamika kretanja  $^{40}\text{K}$  u segmentima uzorka kore, srčike i iglica obične jele

## ZAKLJUČAK – Conclusion

Petnaest godina nakon akcidenta u Chernobylu,  $^{137}\text{Cs}$  je pronađen u uzorcima grana stabala obične jele (*Abies Alba*) na Sljemenu u dobro mjerljivim količinama. Aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  u kori, iglicama i srčici grana jelovih stabala razlikuje se. Najveća aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  pronađena je u kori grana obične jele, a najmanja u njihovoj srčici. Isto tako razlikuje se i dinamika kretanja  $^{137}\text{Cs}$  tijekom godine. Veća aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  u kori i srčici izmjerena je za vrijeme trajanja vegetacije, odnosno dok stabla intenzivnije obavljaju svoju fiziološku funkciju. Uz  $^{137}\text{Cs}$  mjerili smo i aktivnost  $^{40}\text{K}$ , jer on dospije u

živi organizam, ravnomjerno se raspoređuje, a kako je dominantan radioaktivni element, najveći dio unutarnjeg ozračivanja koje dolazi od prirodnih izvora radioaktivnosti potječe upravo od njega (UNSCEAR, 2000).

Prikazani rezultati indiciraju na važnost praćenja dinamike  $^{137}\text{Cs}$ , jer baš ovo istraživanje pokazuje i potvrđuje da je i petnaest godina nakon Chernobyla  $^{137}\text{Cs}$  još uvijek prisutan u značajnim količinama i u šumskom ekosustavu. Prikazani model dinamike kretanja  $^{137}\text{Cs}$  i povezivanje tog kretanja u odnosu na fiziološke funkcije stabala, omogućili bi nam jasnije i točnije sus-

tavno praćenje i nekih drugih posljedica globalnog zagđivanja, a koja se događaju u šumskom ekosustavu

ostavljajući negativne posljedice na razvoj stabala, u ovom slučaju obične jele.

## LITERATURA – References

- Antonopoulos-Domis, M., A. Clouvas & A. Gagianas, 1990: Derivation of Soil to plant Transfer Factors of Radiocesium in Northern Greece After the Chernobyl Accident, and Comparasion with Greenhouse Experiments. *Environ. Pollution*, 68: 1–2, 119–128.
- Assmann-Werthmüller, U., K. Werthmüller, D. Molzahn, 1991: Cesium contamination of heather honey. *J. Rad. Nucl. Chem. Art.*, 149: 1, 123–129.
- Baratta, E. J., 1994: Radionuclides in food. In: Manuals of food Quality control. FAO of United Nations, Rome, 1979.
- Barišić, D., K. Košutić, K. Kvastek, S. Luluć, J. Tuta, A. Vertačnik, A. Vrhovac, 1987: Procjena kontaminacije područja SR Hrvatske putem radioaktivnih oborina kao posljedica nesreće u NE "Lenin". U: Zbornik radova XIV Jugoslavenski simpozij za zaštitu od zračenja. Jugoslavensko društvo za zaštitu od zračenja. Novi Sad, 77–82.
- Barišić, D., S. Lulić, A. Vertačnik, 1991: "Predčernobilski"  $^{137}\text{Cs}$  na području Republike Hrvatske u tlu do dubine 262,5 mm. U: Zbornik radova XVI Jugoslavenski simpozij za zaštitu od zračenja. Jugoslavensko društvo za zaštitu od zračenja. Neum, 15–18.
- Barišić, D., A. Vertačnik, S. Lulić, 1999: Cesium contamination and vertical distribution in undisturbed soils in Croatia. *J Environ Radioact* 46, 361–374.
- Bunzl, K. W. Kracke, W. Schimamack, K. Auerswald, 1995: Migration of Fallout  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the various Horizons of a Forest Soil Under Pine. *J Environ Radioact* 28, 17–34.
- Bureau of Radiological Health, komp. Ur., 1970: Radiological Health Handbook. U.S. Department of Health, Education, and Welfare. Rockville, Maryland.
- Cremers, A., A. Elsen, P. DePreter & A. Maes, 1988: Quantitative analysis of radioceasium retention in soils. *Nature*, 335, 247–249.
- Coughtrey, P. J., J. A. Kirton, N. G. Mitchell, C. Morris, 1989: Transfer of Radioactive Cesium from Soil to Vegetation and Comparasion with Potassium in Upland Grasslands. *Environ. Pollution*, 62: 4, 281–315.
- Eisenbud, M., 1987: Environmental Radioactivity. Academic Press, INC. London
- Federation of American Scientists (FAS), 2002: Comprehensive Test Ban Treaty Chronology. (cited 2002 Nov 13) Available from : [URL: http://www.fas.org/nuke/control/ctbt/chron1.htm](http://www.fas.org/nuke/control/ctbt/chron1.htm)
- Filipović, I., S. Lipanović, 1988: Opća i anorganjska kemija. Školska knjiga, Zagreb
- Filipović-Vinceković, N., D. Barišić, N. Mašić, S. Lulić, 1991: Distribution of fallout radionuclides through soil surface layer. *J Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 148, 53–62.
- Gaso, M. I., N. Segovia, T. Herrera, E. Perez-Silva, M. L. Cervantes, E. Quintero, J. Palacios, E. Acosta, 1998: Radiocesium accumulaton in edible wild mushrooms from coniferous forests around the nuclear Centre of Mexico. *Sci Total Environ* 223, 119–129.
- Heinrich, G., K. Oswald, H. J. Müller, 1999: Lichens as monitors of radiocesium and radiostrontium in Austria, *J Environ Radioact* 45, 13–27.
- Glavač, V., 2003: Prilog poznавању екофизиолошких svojstava bukve u svjetlu novonastalih šumskih šteta. Obična bukva u Hrvatskoj (monografija), 170–212, Zagreb.
- Jackson, D., 1989: Chernobyl-derived  $^{137}\text{Cs}$  in heather plants in Northwest England. *Hlth. Phys.*, 57: 3, 485–489.
- Kirchner, G., O. Daillant, 2002: The potential of lichens as long as long-term biomonitoring of natural and artificial radionuclides. *Environ Pollut* 120, 145–150.
- Kraljević, P., 1989: Kretanje Cezija – 137 kroz biosferu i njegov metabolizam u životinjskom organizmu. *Vet satnica* 20, 15–19.
- Krutyš, N., B. Delvaux, 2002: Soil organic horizons as a major source for radiocesium biorecycling in forest ecosystems. *J Environ Radioact* 58, 175–190.
- Lokobauer, N., 1988: Radioaktivna kontaminacija i procjena rizika nakon nuklearnog accidenta. Disertacija. Prehrambeno-biotehnološki fakultet Sveučilišta u Zagrebu. Zagreb.
- Lokobauer, N., Z. Franić, A. Bauman, M. Mačić, D. Cesar, J. Senčar, 1998: Radiation Contamination after Chernobyl Nuclear Acci-

- dent and Effective Dose Received by the Population of Croatia. *J Environ Radioact* 41, 137–146.
- Livens, F. R., A. D. Horrill and D. L. Singleton, 1991: Distribution of radiocesium in the soil-plant system of upland areas of Europe. *Hlth. Phys.*, 60: 4, 538–545.
- Marović, G., 1990: Procjena nuklearnog akcidenta pomoću bioindikatora. Disertacija. Tehnološki fakultet Sveučilišta u Zagrebu. Zagreb.
- Medvedović, J., 2001: Klima i hidrološke prilike u jelovim šumama panonske Hrvatske, Obična jela u Hrvatskoj (monografija), 147–161, Zagreb.
- Pernar, N. 2001: Tla jelovih šuma u Hrvatskoj, Obična jela u Hrvatskoj (morfologija), 107–132, Zagreb.
- Petrović, B., G. Đurić, 1981: Elementi radioekologije u stočnoj proizvodnji. (Nastavna materija za predmet Zaštita životne sredine za studente poslijediplomskih studija na veterinarskom fakultetu). S. n. Beograd
- Reelman, A. S., 1956: The Physiological behavior of rubidium and cesium in relation to that of potassium. *Yale J Biol Med* 28, 248–262. Cit. prema: B. Ahman, 1994.
- Rosén, K., I. Öborn, H. Lönsjö, 1999: Migration of radiocaesium in Swedish soil profiles after the Chernobyl accident 1987–1995. *J Environ Radioact* 46, 45–66.
- Seleković, I. N. Potočić, 2004: Oštećenost šuma u Hrvatskoj u razdoblju od 1999. do 2003. godine, Šumarski list 630, (3–4): 137–148, Zagreb.
- Shand, C. A., M.V. Cheshire, S. Smith, M. Vidal, G. Rauret, 1994: Distribution of radiocesium in organic soil. *J Environ Radioact* 23, 285–302.
- Shaw, G., J. N. B. Bell, 1989: The kinetics of cesium absorption by roots of winter wheat and the possible consequences for the derivation of soil – to – plant transfer factor. *J Environ Radioact* 10, 213–231.
- Trinajstić, I., 2001: Rasprostranjenost, morfologija i taksonomija jele u Hrvatskoj, Obična jela u Hrvatskoj (monografija), 93–106, Zagreb.
- Vukelić, J., D. Baričević, 2001: Šumske zajednice obične jele u Hrvatskoj, Obična jela u Hrvatskoj (monografija), 162–196, Zagreb.
- Wegener, K. H., 1966: Radioaktivität und Veterinärmedizin. Paul Parey in Berlin und Hamburg. Berlin.
- United Nations Scientific Committee Effects of Atomic Radiation, 1993: Source and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 1993 report to the general assembly, with scientific annexes, United Nations, New York.
- United Nations Scientific Committee Effects of Atomic Radiation, 2000: Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 2000 report to the general assembly, with scientific annexes, United Nations, New York.
- World Health Organization, 1987: Health Hazards from radiocesium following the Chernobyl nuclear accident. Report on a WHO meeting. Schloss Reisesburg Grünzburg, Federal Republic of Germany 9–12 June 1987. WHO Copenhagen.

**SUMMARY:** Cesium 137, or  $^{137}\text{Cs}$ , appeared in the atmosphere after thermonuclear tests were conducted intensively during the 1950's and 1960's, and the last large quantity of  $^{137}\text{Cs}$  was released after the major explosion at Chernobyl, when varying amounts of cesium deposits on the earth's surface were observed. Irradiation was relatively brief, while levels of radioactivity were not equal, because they were linked to the amount of precipitation that appeared uncontrollably as a result of the explosion. Cesium very quickly entered the soil, but it only migrated to deeper layers very slowly due to the effects of surface waters (Filipović et al, 1991). The speed of cesium migration was slowed by radiation absorption processes. A relatively large quantity of clay and micro-minerals resulted in the fast and irreversible bonding of cesium with the soil (Cremers et al, 1988).

Plant species are good indicators of cesium, even though their physiological characteristics may vary. This primarily depends on the free cesium in the root system that the plants have taken in from the soil and the extent of its penetration into the plant. Today it is important to stress that the physiological

properties of plants and trees must be observed in light of new damage to forests caused by atmospheric pollution which is manifested in three different ways: a) through the direct impact of atmospheric pollutants on leaves and assimilation, b) by intake of substances into the soil by dry or wet deposition and its impact on physiological processes in subsoil and external portions of forest trees, and c) by indirect damage due to climate change and increased sensitivity of trees to extreme climatic, edaphic and biotic conditions. The level of radioactivity that contaminated the Republic of Croatia in the form of radioactive fallout has been estimated at  $5.2 \times 10^{15}$  Bq, which is approximately 0.28 % of the total activity released from the reactor at Chernobyl. Cesium behaves and is distributed in an organism in a manner similar to potassium (Baratta, 1994). The speed of cesium's vertical migration in uncultivated soil depends on several factors, such as soil type, its mineral composition, pH, organic matter content, hydrogeological processes, and geochemical processes. On the forest floor, the primary source of  $^{137}\text{Cs}$  is the surface organic layer (Kruyts, Delvaux, 2002). Plants take in microconstituents, including radionuclides, in two ways: indirectly through their roots from the soil, and directly by sedimentation of radionuclides on leaves or flowers.

Out of all potassium isotopes, only potassium -40, or  $^{40}\text{K}$ , is radioactive, i.e. it is a naturally-occurring primordial radionuclide with a half-life of  $1.26 \times 10^9$  years.  $^{40}\text{K}$  is one of the most widespread natural radioactive elements, as it accounts for approximately 1 % of the total number of all atoms formed in the earth's crust and its activity is easily and reliably measured.

In this research we want to contribute to knowledge of the dynamics of movement and the fate of model pollution of forest ecosystems, so the movement of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  on various parts of silver fir trees (*Abies alba*) on the slopes of Sljeme was analyzed for the period from 1997 to 1999. Apex tips, or needles, bark and heartwood from the silver fir were taken as samples.  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  activity were established using the gamma-spectrometry method. In all samples analyzed,  $^{40}\text{K}$  and  $^{137}\text{Cs}$  activity had crossed into the apex tips and young needles. Increase in  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  activity in fir needles from the older to the younger apex sections did not exhibit a linear trend. We compared the dynamic of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  movement in the needles, bark and heartwood by month in each of the three years. The  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  activity trend is increasing from older to younger sections in all parts. Similarly, we can say that activity is greatest in the tree bark in comparison to other tested samples. In each month in 1997, 1998 and 1999 (twelve months per year), the movement of cesium and potassium in the fir trees on Sljeme Mountain was measured. Samples of needles, bark and heartwood were always taken from the same trees.

The results presented indicate the importance of monitoring  $^{137}\text{Cs}$  dynamics, because this research shows and confirms that the cesium recorded after Chernobyl is still in the ecosystem. This model of the dynamics of movement  $^{137}\text{Cs}$  and the link between this movement in relation to the physiological functions of the trees have facilitated more clear and accurate monitoring of other negative consequences which occur in forest ecosystems and have a negative impact on the development of trees, in this case the silver fir.