

**ČESKÉ VYSOKÉ
UČENÍ TECHNICKÉ
V PRAZE**

**FAKULTA JADERNÁ
A FYZIKÁLNĚ INŽENÝRSKÁ**



**DISERTAČNÍ
PRÁCE**

**POKROČILÉ METODY MONITOROVÁNÍ
RADIOAKTIVITY ATMOSFÉRY**

2022

Bibliografický záznam

Autor	Ing. Miroslav Hýža České vysoké učení technické v Praze, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, Katedra dozimetrie a aplikace ionizujícího záření
Název Práce	Pokročilé metody monitorování radioaktivity atmosféry
Studijní program	Aplikace přírodních věd
Studijní obor	Jaderné inženýrství
Školitel	doc. Ing. Petr Průša, Ph.D.
Školitel specialista	RNDr. Petr Rulík
Akademický rok	2021/2022
Počet stran	104
Klíčová slova	radioaktivita, atmosféra, radionuklidy, monitorování, aerosol, spektrometrie záření gama

Bibliographic Entry

Author	Ing. Miroslav Hýža Czech Technical University in Prague, Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering, Department of Dosimetry and Application of Ionizing Radiation
Title of Dissertation	Advanced Methods for Monitoring Radioactivity in the Atmosphere
Degree Programme	Applications of Natural Sciences
Field of Study	Nuclear Engineering
Supervisor	doc. Ing. Petr Průša, Ph.D.
Supervisor specialist	RNDr. Petr Rulík
Academic Year	2021/2022
Number of Pages	104
Keywords	radioactivity, atmosphere, radionuclides, monitoring, aerosol, gamma-ray spectrometry

Abstrakt

Včasné zjištění radioaktivní kontaminace v atmosféře patří mezi hlavní úkoly pro zajištění radiační ochrany obyvatel. Standardní metody monitorování jsou obvykle založeny na několikadenních odběrech atmosférického aerosolu a jeho následné analýze metodami spektrometrie záření gama s vysokým rozlišením. Tento přístup vyniká vysokou citlivostí měření, leč za cenu zpoždění výsledků analýzy vzhledem k okamžiku příchodu možné kontaminace. Tato práce shrnuje vývoj rychlých online metod prováděný v období 2015–2022 ve Státním ústavu radiační ochrany, v.v.i. Prezentované metody jsou založeny na měření aerosolového filtru HPGe detektorem již během odběru vzorku a přesném odečtu přírodního pozadí v online spektrech. Práce dále popisuje propojení spektrometrického měření s metodami inverzního atmosférického modelování pro účely lokace zdroje kontaminace. Tento přístup byl implementován v softwaru, který byl společně s prototypem monitorovacího zařízení zařazen do radiační monitorovací sítě České republiky.

Abstract

Early detection of radioactive contamination in the atmosphere is one of the main tasks for ensuring radiation protection of the population. Standard monitoring methods are usually based on several days of aerosol sampling and its subsequent analysis using high-resolution gamma-ray spectrometry. This approach excels in measurement sensitivity, but only at the cost of delaying the results of the analysis with respect to the arrival of possible contamination. This work summarizes the development of rapid online methods in the period 2015–2022 at the National Radiation Protection Institute. The presented methods are based on aerosol filter measurement already during sample collection using an HPGe detector and an accurate subtraction of the natural background in online spectra. Furthermore the coupling of spectrometric measurements with inverse atmospheric modeling methods is discussed for the purpose of contamination source location. This approach was implemented in the software, which together with a prototype of online monitoring system has been employed in the radiation monitoring network of the Czech Republic.

Seznam zkratek	6
1. Úvod.....	7
1.1. Motivace.....	7
1.2. Historie monitorování radioaktivních aerosolů.....	8
1.3. Vlastnosti a modelování radioaktivního aerosolu	14
1.3.1. Depoziční mechanismy atmosférického aerosolu.....	16
1.3.2. Modelování atmosférického transportu aerosolu.....	21
1.3.3. Inverzní atmosférické modelování.....	23
2. Pokročilé monitorovací metody.....	27
2.1. Standardní metody monitorování	27
2.1.1. Odběr vzorků	28
2.1.2. Analýza vzorků	29
2.2. Autonomní systémy pro semikontinuální monitorování.....	30
2.3. Principy online monitorování.....	33
2.4. Metody online spektrometrie s vysokým rozlišením	35
2.4.1. Přístrojové vybavení a kalibrace	35
2.4.2. Popis měřených dat	36
2.4.3. Metody analýzy online spekter	38
2.4.4. Validace metody	49
2.4.5. Propojení online spekter s meteorologickými daty.....	58
2.4.6. Softwarová implementace.....	60
3. Závěr	63
Literární zdroje	66
Příloha A – Související výzkumné projekty	74
Příloha B – Vybrané výsledky analýzy velikostní distribuce atmosférického aerosolu.....	75
Příloha C – Publikace: Real-time measurement of radionuclide concentrations and its impact on inverse modeling of ¹⁰⁶ Ru release in the fall of 2017	80
Příloha D – Publikace: Optimization of the radioactive aerosol sampling and measuring procedure with respect to radon concentration in the air	97
Příloha E – Publikace: Low-level atmospheric radioactivity measurement using a NaI(Tl) spectrometer during aerosol sampling	102

SEZNAM ZKRATEK

AE	autoenkodér, typ neuronové sítě
AMAD	aktivitní medián aerodynamického průměru
CPS	četnost impulsů (counts per second)
DPR	dceřiné produkty radonu
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
EPA	Environmental Protection Agency
GM	geometrický průměr
GSD	geometrická standardní odchylka
HAMRAD	Havarijní měřič radioaktivního aerosolu s dálkovým přenosem dat (projekt)
HPGe	germaniový spektrometr
Hysplit	Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model
IHE	Ústav hygieny záření
IMS	mezinárodní monitorovací síť
IZ	ionizující záření
JE	jaderná elektrárna
JSON	JavaScript Object Notation, datový formát
JZ	jaderná zbraň
KL	Kullbackova–Leiblerova vzdálenost
LS-APC	least squares with adaptive prior covariance (inverzní atm. model)
MDA	minimální detekovatelná aktivita
MRS	síť monitorování radiační situace
NASVD	Noise-adjusted singular value decomposition
NMF	non-negative matrix factorization
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration,
OAR	objemová aktivita radonu
OLS	metoda nejmenších čtverců (ordinary least squares)
PCR	principle component regression
PLS	partial least squares method
POV	podoblačné vymývání (washout)
PRESS	predicted residual error sum of squares
R^2_{adj}	adjustovaný koeficient determinace
RN	radionuklid
RO5	sdružení laboratoří "Ring of Five"
ROI	region of interest
rSVD	randomizovaná varianta SVD
RTD	real-time data format
SKP	spektrální komponenta pozadí
SRS	source-receptor sensitivity
SÚRO	Státní ústav radiační ochrany, v.v.i.
SVD	singulární rozklad, singular value decomposition
VIRA	včasná identifikace radioaktivního aerosolu (projekt)
VOV	vnitroblačné vymývání (rainout)

1. ÚVOD

Obsah: Úvodní kapitola představuje hlavní motivace a cíle předkládané práce. V navazujících podkapitolách shrnuje historii monitorování radioaktivních aerosolů a podává stručný přehled vlastností atmosférického aerosolu a principů jeho matematického modelování. Obecný popis je doplněn o některé relevantní výsledky získané v kontextu této práce.

1.1. MOTIVACE

Radioaktivita v ovzduší je předmětem zájmu odborné i laické veřejnosti, zejména v spojitosti s průmyslovými haváriemi jako, tomu bylo v roce 1986 (JE Černobyl) nebo v roce 2011 (JE Fukušima). V těchto situacích je přínos monitorovacích sítí radioaktivity ovzduší zejména pro radiační ochranu obyvatel, nicméně v roce 2017, kdy bylo na území Evropy detekováno ^{106}Ru , vyvstala i otázka určení zdroje kontaminace neznámého původu spadající svým zaměřením spíše do forenzní analýzy.

Cílem atmosférického monitorování je včasná a citlivá detekce kontaminace, tyto dva požadavky však stojí proti sobě a jsme nuceni slevit z jednoho, nebo z druhého.

Je tomu ale skutečně tak?

Tato práce prezentuje původní výsledky výzkumu prováděného ve Státním ústavu radiační ochrany, v.v.i. (SÚRO) s cílem posunout hranice tohoto kompromisu mezi včasností a citlivostí detekce co nejdál. Zároveň je prezentováno propojení rychlých metod detekce s modelováním atmosférického transportu.

Představen je postupný vývoj těchto metod v období 2015–2022, který ale nadále aktivně pokračuje. Téma je dále vymezeno tím, že jsou zde popisovány pouze metody monitorování radioaktivního aerosolu a není zde věnována pozornost plynným složkám, byť by si ji zaslouhovaly. Další vymezení vyplývá z povahy prezentovaných metod, jež jsou zaměřeny pouze na radionuklidy emitující záření gama.

1.2. HISTORIE MONITOROVÁNÍ RADIOAKTIVNÍCH AEROSOLŮ

The idea was to explode the damned thing...

We were not terribly concerned with the radiation.

Hymer L. Friedell ¹

První pokusy o systematické monitorování umělých radionuklidů v atmosféře se datují do USA 40. let a prvního testu jaderné zbraně (JZ) v Novém Mexiku. Pro účely monitorování šíření radioaktivní kontaminace tehdy byly použity speciálně navržené plynové detektory (ionizační komory, Geiger-Müllerovy trubice, proporcionální detektory) a aerosolový kolektor s průtokem 50 L/min s jemno-vláknovým papírovým filtrem². Tyto kolektory byly zapojeny v monitorovací síti obsahující jak samotnou velicí základnu, tak měřicí místa v okolních městech, kde je spolu s dalším vybavením obsluhovala skupina přibližně 20 vládních agentů³ (**Hacker, 1987**).

Přestože již na základě prvního testu bylo jasné, že použití JZ s sebou nevyhnutelně nese i transport radioaktivní kontaminace na velké vzdálenosti, nebyla tomuto problému zpočátku věnována odpovídající pozornost.

Rizika spojená s radioaktivním spadem byla před veřejností důsledně tajena a i po bombardování Hirošimy a Nagasaki byly zmínky o záhadné nemoci X pozorované u části přeživších označovány jako součást japonské propagandy. Poprvé byla širší veřejnost seznámena s radiologickými důsledky JZ až v roce 1946, kdy v časopisu New Yorker vyšla Herseyova rozsáhlá reportáž s názvem *Hiroshima* (**Hersey, 1946**).

Rostoucí počet jaderných testů, zejména termojaderných JZ, v 50. letech nevyhnutelně vzbudil obavy z následků globálního spadu. Důsledkem byla zvýšená snaha o

¹ H. L. Friedell byl jednou z hlavních osob zodpovědných za radiační ochranu a monitorování šíření radioaktivní kontaminace během prvního jaderného testu v rámci operace Trinity v roce 1945.

² Aerosolový kolektor je z dnešního pohledu možná trochu nadnesené označení. Ve své podstatě šlo totiž o mírně upravený domácí vysavač značky „*Filter Queen*“, který se v té době prodával pod reklamním sloganem – „*The world's finest vacuum cleaner!*“.

³ Nutno podotknout, že hlavní motivací pro vybudování monitorovací sítě mimo testovací polygon nebyla (alespoň ne zprvu) radiační ochrana obyvatel, ale obava z případných soudních sporů, kterým by armáda v případě nepovedeného průběhu testu mohla čelit.

kvantifikaci tohoto fenoménu a s tím spojený rozvoj monitorovacích systémů, zejména v USA, ale i v UK, Japonsku či SSSR. Svým rozsahem byl zřejmě největším počinem na tomto poli zpočátku utajený americký projekt *Sunshine*, zahájený v roce 1953. Jeho cílem bylo odhadnout zdravotní dopady globálního spadu na lidskou populaci, přičemž za největší hrozbu bylo v té době považováno ^{90}Sr a jeho možná akumulace v kostní tkáni obyvatelstva. Vedoucím projektu nebyl nikdo jiný, než už v té době věhlasný W. F. Libby, známý svou metodou radiouhlíkového datování. Tuto metodu založil Libby na citlivé detekci ^{14}C za použití aktivního stínění (antikoincidenční zapojení GM detektorů), a proto byly jeho zkušenosti klíčové i pro vývoj citlivých metod monitorování atmosférického ^{90}Sr . Vzorkování aerosolu probíhalo pomocí elektrostatické depozice a difúzních mřížek, které byly v té době považovány za nejlepší metodu vzorkování aerosolu o velikostech řádově $0.01\ \mu\text{m}$ (**Lapp, 1959; USAEC, 1953**). V rámci projektu *Sunshine* bylo v provozu zhruba 100 monitorovacích stanic atmosférické radioaktivity v USA i v zahraničí (**Higuchi, 2011**).

Během amerických testů termojaderných zbraní v jižním Pacifiku popsali japonští vědci fenomén tzv. radioaktivního deště („*hot rain*“) a později detekovali ve vzduchu kontaminaci pocházející ze sovětských jaderných testů. Přes popírání ze strany SSSR bylo na základě japonsko-francouzské meteorologické analýzy určeno, že zdrojem je SSSR (**Higuchi, 2011**). Jedná se tak pravděpodobně o jeden z prvních mezinárodních pokusů o lokaci zdroje kontaminace na základě monitorovacích dat a inverzního atmosférického modelování⁴. Recipročně byla monitorována aktivita USA v Tichomoří – Sověti prostřednictvím leteckých průzkumů, balonu apod. monitorovali průběh jaderných testů Američanů (**Higuchi, 2011**). Ve stejné době byly provedeny první odhady rezidenční doby radioaktivního aerosolu ve stratosféře, kdy původní predikce na základě Libbyho difúzního modelu ukazovaly na homogenní distribuci ^{90}Sr nezávisle na zeměpisné šířce a na dlouhou dobu setrvání – přibližně 10 let (**Libby, 1956**). Proti tomuto zjednodušení aktivně vystupoval americký meteorolog L. Machta,

⁴ První doložená lokace zdroje radioaktivní kontaminace prostřednictvím inverzního modelování byla provedena při odhalování polohy sovětské jaderné střelnice v roce 1949. Analýzou zpětných trajektorií z polohy průzkumného letounu B-29, který zachytil radioaktivní kontaminaci po výbuchu JZ, byla její poloha určena na území dnešního Kazachstánu (Semipalatinsk) (**Machta, 1992**).

který na základě realističtějších modelů uvažujících Brewer-Dobsonovu cirkulaci (**Brewer, 1949; Dobson, 1956**) předpovídal kratší dobu setrvání a vyšší úroveň spadu ve středních zeměpisných šířkách (**Higuchi, 2011**). Později se na základě balónových měření vertikálních profilů aktivity ^{90}Sr ukázalo, že pravdu skutečně měli Libbyho kritici, což položilo základy sofistikovanějších modelů zahrnujících i sezónní vlivy na transport mezi stratosférou a troposférou, viz například diskuze v práci (**Martell, 1959**). Tyto modely pak byly použity pro vysvětlení pozorování jarních maxim ^{90}Sr (tzv. „*spring leaks*“) a predikovaly dobu setrvání stratosférického aerosolu v řádu měsíců až jednotek let. Jaderné testy tak sice nepřímě, ale přesto významně přispěly k rozvoji meteorologie (**Machta, 2002**).

Kromě problému globálního spadu přinesla 50. léta do popředí i problém havárií jaderných zařízení. V roce 1957 došlo na jaderném reaktoru Windscale (UK) k první významné havárii jaderného reaktoru spojené s únikem radionuklidů do životního prostředí (**Garland & Wakeford, 2007**). Závažná havárie s radiologickými důsledky se odehrála v témže roce i na území SSSR, kdy v důsledku chemické exploze v závodě Majak (Čeljabinská oblast) určeném k výrobě zbraňového plutonia a přepracování jaderného paliva došlo ke kontaminaci zhruba 52 tis. km². Zasaženy byly stovky tisíc obyvatel (**Jones, 2008; Romanov et al., 1990**). Až do roku 1989 byla ze strany SSSR havárie tajena.

V 60. letech vznikají po světě první instituce, většinou podřízené hygienickým orgánům, které mají za úkol zajišťovat radiologické monitorování životního prostředí. Ne jinak je tomu i v Československu, kde v roce 1965 zahajuje činnost Ústav hygieny záření (IHE), v rámci jehož činnosti vznikají mimo jiné i metodiky pro stanovení umělých radionuklidů v ovzduší (**Alena Drábková (Editor), 2006**). Metody byly založeny na monitorování celkové aktivity beta ve vzorcích spadu a atmosférického aerosolu. V případě detekce abnormálních hodnot byla provedena bližší analýza a určeny zájmové radionuklidy (**Moldan, 1990**). Takto byly IHE detekovány čínské a francouzské jaderné testy v letech 1965–1967.

V roce 1963 vchází v platnost mezinárodní smlouva o zákazu atmosférických jaderných testů a od té doby dochází k poklesu koncentrace umělých radionuklidů v ovzduší. Do této doby bylo v důsledku globálního spadu na území Československa

deponováno přibližně 5 kBq/m^2 ^{137}Cs (UNSCEAR, 2000a). Atmosférické modelování se díky novým popisům turbulentní difúze⁵ posouvá směrem k více realistickým gaussovským disperzním modelům.

Další pokrok na poli monitorovacích metod atmosféry přichází v 70. letech s rozvojem polovodičové spektrometrie pomocí Ge(Li) a později HPGe detektorů, které si rychle našly své místo i v dalších oblastech environmentálního monitorování (Eberth & Simpson, 2008). V roce 1979 dochází k havárii v jaderné elektrárně Three Mile Island (Ahearne, 1980), v rámci které spustila EPA rozsáhlý monitorovací program založený mimo jiné i na odběrech atmosférické radioaktivity prostřednictvím aerosolových kolektorů vybavených papírovým filtrem a sorbentem pro záchyt plyných forem jódu (Perham, 1980).

I na základě zkušeností z havárie na Three Mile Island byl v únoru 1986 v Československu přijat vládní předpis o způsobu monitorování radiační situace po havárii jaderného reaktoru. V dubnu 1986 pak došlo k historicky dosud nejzávažnější havárii JE v Černobylu. V důsledku parního výbuchu a následného zhruba 10denního požáru grafitového moderátoru byla do ovzduší uvolněna významná část celkového inventáře radionuklidů havarovaného reaktoru (UNSCEAR, 2000b). Havárie byla sovětským režimem před okolním světem zpočátku tajena, nicméně o dva dny později pracovníci švédských a dánských JE identifikovali rozsáhlou kontaminaci vnějšího ovzduší a jako pravděpodobný zdroj označili některou z JE v SSSR. Evropské země zahájily rozsáhlé monitorovací kampaně, mezi nimi i tehdejší Československo, kde byla sledována i radioaktivita ovzduší metodami založenými na velkokapacitních kolektorech aerosolu (včetně jeho velikostní distribuce, viz (Malá et al., 2013)) a na detekci plyných forem jódu a polovodičové spektrometrii (Kunz, 1987). Zásadním rozdílem v tehdejším přístupu oproti současnosti byla tehdejší nedostupnost sofistikovaných nástrojů atmosférického modelování. De facto neexistovaly na kontinentální úrovni transportu žádné modely schopné operačního nasazení, jaké známe dnes. Krátce po havárii byly použity disperzní modely PATRIC (U.S.

⁵ První modely obsahují tzv. Pasquill-Gliffordova schéma, které je založeno na klasifikaci atmosférických podmínek do několika tříd stability.

Department of Energy) a MESOS (*Imperial College London*), které nebyly původně určeny pro analýzu událostí odpovídajících černobylskému scénáři, nicméně poskytly alespoň hrubý vhled do situace (**Benamrane et al., 2013**). V SSSR přitom nebyl k dispozici žádný podobný nástroj. Na základě zkušeností z černobylské havárie pak započal vývoj operačních modelů k predikci šíření kontaminace z bodového zdroje na velké vzdálenosti se zahrnutím depozičních procesů, resuspenze atd.

Bezprostředně po havárii se rovněž ukázala naléhavá potřeba nadnárodních informačních systémů, v důsledku čehož se z iniciativy Evropské komise zrodily platformy EURDEP/ECURIE pro rychlé a standardizované sdílení dat mezi evropskými zeměmi (**Sangiorgi et al., 2020**).

Paralelně se vznikem těchto platforem nabývá na významu i neformální sdružení evropských laboratoří RO5 (*Ring of Five*)⁶, v rámci kterého si odborníci z oboru atmosférického monitorování vyměňují aktuální data mimo oficiální komunikační kanály, zato však velmi rychle a pružně.

Dalším významným krokem na poli radiologického monitorování atmosféry bylo v 90. letech vybudování mezinárodního monitorovacího systému (IMS) (**Hoffmann et al., 1999**) sloužícího k verifikaci dodržování smlouvy o všeobecném zákazu jaderných zkoušek (CTBT) přijaté v roce 1996. V rámci IMS v současnosti operuje 80 tzv. *radionuklidových stanic* monitorujících radioaktivitu v ovzduší, rozmístěných ve 27 zemích s tím, že v rovníkových oblastech jsou z důvodu nevýhodného atmosférického proudění rozmístěny s vyšší hustotou než ve středních zeměpisných šířkách. Přibližně třetina stanic je vybavena automatickými kolektory atmosférického aerosolu s možností spektrometrické analýzy filtru a přibližně polovina pak disponuje možností analýzy radioaktivních vzácných plynů. Získaná data jsou doplněna o výstupy globálních atmosférických modelů, výsledky seismických, infrazvukových a hydroakustických měření, což v principu umožňuje detekovat utajený test JZ⁷.

⁶ Název RO5 odkazuje k počátkům sdružení v 70. letech, kdy bylo tvořeno 5 laboratořemi sdílejícími informace telefonicky/faxem. Ačkoliv doba pokročila a počet členů se mnohonásobil, tento mysteriózní název zůstal a dodnes tak budí u laiků velkou zvědavost (**Masson, b.r.**)

⁷ Přestože je IMS navržena k detekci utajených jaderných testů (což úspěšně plnila detekci severokorejských testů z let 2013–2017 (**Gaebler et al., 2019**)), nejsilněji ručičku infrazvukové měřicí stanice vychýlil zcela přírodní úkaz a to sice pád a exploze tzv. Čeljabinského meteoritu v roce 2013.

V roce 2011 došlo k havárii na japonské JE Fukušima, která se svým rozsahem řadí hned za tu černobylskou (UNSCEAR, 2022). Z pohledu atmosférického modelování však za 25 let, které obě události dělí, došlo ke značnému pokroku jak na straně detekční techniky, tak na straně atmosférických modelů. V rámci monitorovací kampaně byla ve větším rozsahu stanovována i velikostní distribuce aerosolu, chemická speciace radionuklidů a analýza tzv. horkých částic (Hirose, 2020). Detekce vzácných plynů byla zajištěna stanicemi IMS. Stran atmosférického modelování bylo díky pokročilejší výpočetní technice možné použít modely s podrobnějším časovým i geografickým rozlišením a se zapojením pravděpodobnostních/ansámblových metod (LE et al., 2021; Ulimoen et al., 2022) inverzního modelování ke zpětnému určení zdrojového členu, viz přehledová práce (Benamrane et al., 2013).

Dalším, i když mnohem méně významným, zátěžovým testem monitorovacích sítí byla detekce ^{106}Ru , které bylo na podzim 2017 detekováno prakticky ve všech zemích Evropy. Zjištěná koncentrace sice byla nízká (na úrovni mBq/m^3), nicméně nebyl známý její zdroj. Intenzivní spolupráce mezi laboratoři RO5 pak v souhrnné analýze označila jako zdroj již zmiňovaný závod Majak v Čeljabinské oblasti (Rusko). Oficiálně tato hypotéza ze strany ruských představitelů nebyla potvrzena.

V současnosti pokračuje kontinuální proces vylepšování monitorovacích prostředků, zejména automatických systémů zapojených v IMS, ale i v jednotlivých laboratořích sledujících radioaktivitu v ovzduší. V České republice probíhá vývoj nových metod atmosférického monitorování zejména ve Státním ústavu radiační ochrany, v.v.i. (SÚRO). Inverznímu modelování radionuklidové kontaminace ovzduší se detailně věnuje Ústav teorie informace a automatizace AVČR, se kterým SÚRO na tomto výzkumném projektu úzce spolupracuje. Výsledky dosažené na tomto poli v období 2015–2022 jsou blíže popsány v následujících kapitolách.

Síla exploze byla na základě IMS analýzy odhadnuta na cca 500 kT (Pilger et al., 2015). Okolí Čeljabinsku se tak z pohledu monitorování jeví jako unikátní testovací oblast (vzpomeneme-li na havárii v roce 1957, nedávný únik ^{106}Ru v roce 2017...).

1.3. VLASTNOSTI A MODELOVÁNÍ RADIOAKTIVNÍHO AEROSOLU

Atmosférický aerosol je tvořen pevnými, nebo kapalnými částicemi o rozměrech přibližně 0,1 nm – 10 μm suspendovanými ve vzduchu. Do ovzduší se dostává buď přímo, nebo ve formě prekurzorů, které jsou následně fyzikálně chemickými procesy transformovány do aerosolové formy.

Radioaktivní aerosoly pak obsahují radionuklidy jak přírodního (^7Be , ^{22}Na , ^{210}Pb , ^{40}K ,...), tak umělého původu (^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{131}I , ^{106}Ru ,...). Z pohledu transportních mechanismů relevantních pro jejich monitorování nehraje v nich obsažená aktivita zásadní roli a jejich chování je tedy identické s neaktivním aerosolem. To z nich činí užitečné stopovače mnoha atmosférických procesů.

Zásadním parametrem určujícím osud dané částice v ovzduší je její velikost D_p . Jelikož však aerosoly mohou nabývat nejrůznějších tvarů, zavádí se tvarové koeficienty anebo se velikost vyjadřuje pomocí průměru ekvivalentní koule o jednotkové hustotě, která má stejnou usazovací rychlost jako uvažovaná částice. V takovém případě hovoříme o tzv. aerodynamickém průměru D_a (**Hinds, 1999**).

Popisovat chování aerosolu na úrovni jednotlivých částic by bylo značně komplikované, a proto se v praxi využívá statistického přístupu, kdy je uvažována populace aerosolu jako jeden celek. V rámci tohoto formalismu je daný aerosol popisován velikostní distribuční funkcí. Analogicky s velikostí aerosolu může být nahlíženo i na povrch nebo objem (hmotnost) částic, čímž dostáváme povrchové nebo hmotnostní distribuce.

Pro atmosférický aerosol obecně platí, že nejvíce částic má velikost okolo 0.01 μm. Největší celkový povrch⁸ mají částice okolo 2 μm a celková hmotnost je dána zejména částicemi okolo 3 a 10 μm. Velikostní distribuce je tedy multimodální, kdy ve spektru velikostí většinou identifikujeme tři módy (**Papastefanou, 2008**):

⁸ Aktivitní distribuce atmosférického aerosolu kopíruje povrchovou distribuci (**Papastefanou & Bondietti, 1987**).

1. Aitkenův mód; $D_a < 0,1 \mu\text{m}$; je tvořen zejména částicemi vzniklými kondenzací přesycených par
2. Akumulační mód; $0,1 \mu\text{m} < D_a < 2 \mu\text{m}$; obsahuje aerosol vzniklý koagulací submikronových částic
3. Hrubý aerosol; $D_a < 2 \mu\text{m}$; zastoupen hlavně aerosolem mechanického původu

Pro toto velikostní rozdělení neexistuje univerzální distribuční funkce a v praxi je často modelováno jako superpozice log-normálních rozdělení (více viz například podrobný popis v publikaci (**Maiello & Hoover, 2011**)). V případě unimodální distribuce je pak možno aerosol popsat geometrickým průměrem GM a geometrickou standardní odchylkou GSD. Pro radioaktivní aerosol se dále definuje tzv. aktivitní medián aerodynamického průměru AMAD jako takový D_a , pro který platí, že polovina celkové aktivity aerosolu je asociována s aerosolem větším než D_a ⁹. Pro účely monitorování a modelování radioaktivních aerosolů v atmosféře je nutné uvažovat jak depoziční mechanismy, tak mechanismy zapojené při odběru vzorků prostřednictvím filtrace.

Na základě měření v období 2015–2018 byl v SÚRO prováděn kontinuální monitoring velikostní distribuce aerosolů¹⁰ asociovaných s ^7Be , ^{210}Pb a ^{137}Cs . Cílem studie bylo stanovení pozadřové velikostní distribuce a její případné sezónní a lokální variace na třech odběrových místech v ČR. Pozorovaná rozdělení jsou přibližně log-normální a unimodální, ačkoliv byly pozorovány i distribuce naznačující bimodalitu. Odchylky ve velikostních distribucích mezi jednotlivými odběrovými místy ani ročními obdobími nebyly statisticky významné. Oba přírodní radionuklidy ^7Be a ^{210}Pb vykazovaly podobné rozdělení charakteristické pro akumulační mód atmosférického aerosolu (^7Be : [AMAD = 0,55 μm , GSD = 2,8]; ^{210}Pb : [AMAD = 0,53 μm , GSD = 3,3]). V jednom kombinovaném vzorku bylo stanoveno i velikostní rozdělení pro pozadřové ^{137}Cs jako [AMAD = 0,36 μm , GSD = 9,2]. Podrobnosti lze nalézt v **Příloze B** této práce.

⁹ V některých aplikacích týkajících se zejména submikronových částic se analogicky s AMAD zavádí i aktivitní medián termodynamického průměru AMTD. Termodynamický průměr je odvozen od poloměru koule jednotkové hustoty, která má stejný difúzní koeficient jako uvažovaný aerosol.

¹⁰ Analýza byla založena na odběru vzorků aerosolu prostřednictvím 6 a 10stupňových kaskádních impaktorů. Meze třídění byly v rozmezí 0.16–18 μm .

Tyto hodnoty se shodují s měřeními jež souvisí s haváriemi na JE Černobyl a Fukušima pro těžké radionuklidy ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{131}I , ^{106}Ru , ^{106}Ru , ^{132}Te . Vyšší hodnoty AMAD oproti akumulárnímu módu byly pozorovány pouze v případě refrakterních radionuklidů ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{95}Nb , ^{95}Zr v prvních fázích počernobylského monitorování.

1.3.1. DEPOZIČNÍ MECHANISMY ATMOSFÉRICKÉHO AEROSOLU

Depozice aerosolu na zemský povrch probíhá gravitačním usazováním (suchá depozice), nebo vymýváním v důsledku dešťových srážek (mokrý depozice). Oba mechanismy silně závisí na velikostní distribuci uvažovaných částic a existuje pro ně množství více či méně komplikovaných semi-empirických parametrizací.

Vzhledem k inherentním nejistotám v odhadu velikostní distribuce částic, intenzity srážek a typu povrchů, na které je aerosol deponován, jsou v praxi často voleny jednoduché parametrizace založené na agregovaných koeficientech. Suchá depozice je například popisována pomocí usazovací rychlosti aerosolu V_d , která s D_p souvisí prostřednictvím Stokesova vztahu jako (**Papastefanou, 2008; Zhang et al., 2001**):

$$V_d = \frac{F(Bq\ m^{-2}\ s^{-1})}{C_{vzduch}(Bq\ m^{-3})} = \frac{D_p^2}{18\eta} (\rho_p - \rho_{vzduch}) g C_c$$

kde F je depoziční příkon aerosolu, C_{vzduch} je koncentrace aerosolu v ovzduší, η je viskozita vzduchu, ρ_{vzduch} je hustota vzduchu, ρ_p je hustota aerosolové částice, g je gravitační zrychlení a C_c představuje tzv. Cunninghamův korekční faktor¹¹. Pro větší částice mimo obor platnosti Stokesova zákona je pak nutné uvažovat součinitel odporu a použít komplexnější parametrizace, viz například přehledové práce (**Sportisse, 2007**) nebo (**Zhang & He, 2014**).

Usazovací rychlost nabývá minima pro aerosoly o velikostech v rozmezí přibližně 0,1–1 μm . Typické hodnoty V_d pro aerosol asociovaný s radionuklidy běžnými v ovzduší (^7Be , ^{210}Pb , ^{137}Cs) se pohybují v rozmezí desetin až jednotek cm s^{-1} (**Papastefanou, 2008; Zhang & He, 2014**).

¹¹ Slouží ke korekci Stokesova vztahu, který je platný pro kontinuum i pro plyn klouzající podél povrchu částice.

Mokr  depozice v sobe zahrnuje dva mechanismy: vnitroobla n  vymyv n  (VOV, *rainout*); podobla n  vymyv n  (POV, *washout*). Vymyv n  uvnitř oblaku je zpřůsobeno v z n m aerosolu na vodn  kapky uvnitř oblaku zejména kondenzac , zatímco u podobla n ho jsou  st ice aerosolu vymyv ny kolizemi s padaj c mi kapkami mezi oblakem a zem . Proces mokr  depozice je obvykle modelov n jako:

$$\frac{dc}{dt} = -\lambda c$$

kde λ je vymyv c  koeficient, kter  vyjadřuje  innost vymyv c ho procesu a c je atmosf rick  koncentrace aerosolu. Parametrizace λ v sobe zahrnuje z vislosti na spektru velikost  deřov ch kapek, jejich termin ln ch rychlostech, velikostn  distribuci vymyv n ho aerosolu, typu obla nosti, množství kapaln  vody v atmosf re atd. a je ve sv  podstat  velmi komplikovan . Pro  cely disperzn ho modelov n  v havarijn ch situac ch, nebo v situac ch s neupln mi znalostmi vstupn ch parametrů se  asto přistupuje ke zjednoduřen  parametrizaci pomocí intenzity sr žek R [mm/h] ve tvaru

$$\lambda = aR^b$$

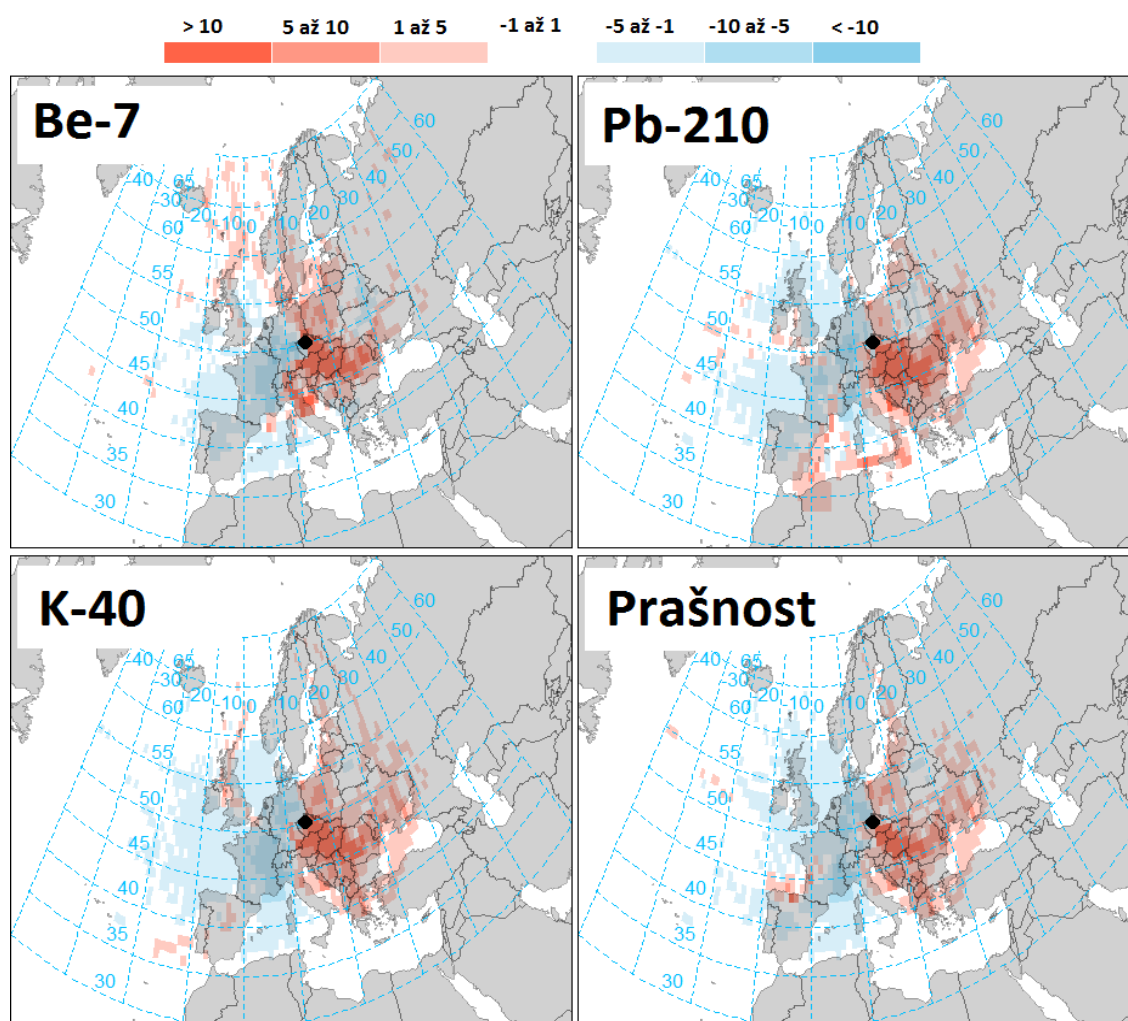
Hodnoty koeficientů a, b jsou pak voleny s ohledem na velikost uvařovan ho aerosolu, př padn  typ mokr  depozice (POV nebo VOV). Pro  st ice asociovan  s ^{131}I a ^{137}Cs po hav rii JE  ernobyl se jejich hodnoty pohybovaly v rozmez : $a = 10^{-5} - 10^{-3}$; $b = 0,5 - 0,8$, viz pr ce citovan  v přehledu (**Sportisse, 2007**).

Podobn  jako u such  depozice, i v př pad  mokr ho vymyv n  pozorujeme minim ln  hodnotu λ u  st ic v rozmez  0,1–1 μm . Existence tohoto minima je d na přechodem mezi dv ma dominantn mi mechanismy, kdy se pro  st ice $<0,1 \mu\text{m}$ vyznamn  uplatňuje difuzn  interakce a pro  st ice $>1 \mu\text{m}$ dominuje setrva n  impakce. V přechodov  oblasti pak pozorujeme  st ice tzv. Greenfieldova minima, kter  atmosf rick m depozi n m procesům odol v j  nejd le a ze stejn ho důvodu je nejobt řn jř  i jejich vzorkov n  prostřednictv m filtrace.

Mokr  depozice je dominantn m mechanismem odstraňov n  atmosf rick ho aerosolu z atmosf ry. Pro ilustraci, v Praze tvoř  mokr  spad př bliřn  90 % z celkov  deponovan  plořn  aktivity ^7Be , a to i přesto, že sr řkov  ud losti prob h j  pouze po zlomek  asu monitorovac ho období. Meteorologick  podm nky jsou ve středn 

Evropě řízeny převážně západním, oceánským typem proudění vzduchu, které je obvykle spojeno s vyšší vlhkostí, a proto lze v jeho souvislosti očekávat i nižší koncentrace aerosolu kvůli větší míře mokré depozice. Toto pozorování je graficky znázorněno na **Obrázku 1.3-1**.

Obrázek 1.3-1 Geospaciální frekvenční distribuce aktivit sledovaných radionuklidů a prašnosti v závislosti na směru proudění. Barevná škála představuje procentuální rozdíl v četnosti výskytu vysokých, resp. nízkých koncentrací ve srovnání s četností během celého roku 2015. Analýza je založena na atmosférickém modelování zpětných trajektorií modelem Hysplit.



Poznámka: Charakteristické směry proudění spojené s vyššími koncentracemi sledovaných radionuklidů vcelku očekávaně koreluje s celkovou prašností.

Konkurenčním procesem k depozici je resuspenze, kdy se do ovzduší znovu dostává již deponovaný aerosol, a to v důsledku větru, eroze, požárů biomasy anebo lidskou

činností (zemědělství, doprava,...). Z pohledu fyzikálního modelování je resuspenze ve srovnání s depozicí ještě mnohem komplikovanější problém, do něhož vstupuje množství parametrů, které často ani nelze rozumně odhadnout: lokální rychlost větru, srážky, chemické vlastnosti půdy a deponovaného aerosolu a další. V atmosférických transportních modelech je tento proces často zahrnut prostřednictvím tzv. resuspenzního koeficientu definovaného jako:

$$K = \frac{C(Bq \times m^{-3})}{D(Bq \times m^{-3})}$$

kde C označuje objemovou aktivitu radioaktivního aerosolu v ovzduší a D představuje aktivitu aerosolu deponovaného na povrch.

Závislost K vykazuje výrazný pokles o přibližně tři řády po několika měsících od počátku depozice, což bylo pozorováno během testů JZ (Maxwell & Anspaugh, 2011) i u havárií JE Fukušima (Kaneyasu et al., 2017; Ochiai et al., 2016; Tang et al., 2022) a Černobyl (Garger et al., 1997; Garland & Pomeroy, 1994). Pro modelování časové závislosti $K(t)$ lze použít Garlandův vztah:

$$K(t) = [K(0)t^{-1} + K(T)]e^{-\lambda t}$$

kde $K(0)$ označuje resuspenzní faktor v čase 0 ($1,2 \times 10^{-6} m^{-1}$), t je počet dní po depozici, $K(T)$ je dlouhodobý resuspenzní faktor ($10^{-9} m^{-1}$) a λ je přeměnová konstanta uvažovaného radionuklidu. Při konkrétní aplikaci je třeba mít na paměti, že se jedná o obecný popis, který je nutné korigovat na lokální podmínky pomocí opravných faktorů definovaných odděleně například pro venkovské oblasti, městskou zástavbu, různé rychlosti větru apod. Podrobněji viz (Wellings et al., 2019).

Ačkoliv je ^{137}Cs detekované v ovzduší ČR dominantně lokálního původu, od havárie JE Černobyl probíhá diskuze o možnosti transportu resuspendovaného aerosolu na velké vzdálenosti v důsledku požáru kontaminovaného území (Dowdall et al., 2017; Evangeliou et al., 2014; Yoschenko, Kashparov, Levchuk, et al., 2006; Yoschenko, Kashparov, Protsak, et al., 2006). V dubnu 2020 se naskytl unikátní příležitost k ověření predikčních modelů v důsledku požáru tzv. *rudého lesa*¹² a dalších lokalit

¹² Ukrajinsky *Рудий ліс* – pod tímto označením se skrývá několik km² lesa v bezprostřední blízkosti havarovaného černobylského reaktoru, který v důsledku vysoké úrovně IZ uschnul a poškozené stromy se zbarvily do tmavě červené barvy.

v okolí havarovaného černobylského reaktoru. Svým rozsahem šlo o historicky bezprecedentní událost, která vzbudila značný ohlas v médiích i v odborné komunitě a brzy byly publikovány odhady zdrojového členu na základě disperzních atmosférických modelů (**Beresford et al., 2021; de Meutter et al., 2021; Evangeliou & Eckhardt, 2020; Gueibe et al., 2020; Kashparov et al., 2000; Newman-Thacker & Turnbull, 2021; Protsak et al., 2020**). Odhady na základě různých monitorovacích dat a zvolených přístupů se navzájem lišily i řádově, nicméně v rámci spolupráce mezi ukrajinskými a RO5 laboratořemi vznikl dosud nejobsáhlejší publikovaný soubor aerosolových měření, na kterých bylo možné provést robustnější odhady (**Masson et al., 2021**).

Zdrojový člen ^{137}Cs byl v této práci inverzním modelováním stanoven na 700–1200 GBq, což je konzistentní s odhadem Ukrajinského hydrometeorologického institutu 660–945 GBq, který byl proveden na základě diametrálně odlišné metodologie založené na satelitních snímcích oblasti, znalosti lokální kontaminace půdy a emisních koeficientů pro daný druh biomasy (**Masson et al., 2021**).

Přestože koncentrace resuspendovaného ^{137}Cs rychle klesala se vzdáleností od požáru, v ČR a dalších evropských zemích byly detekovány zvýšené hodnoty. Nicméně na pozorovaných úrovních objemové aktivity (jednotky $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$), nebylo úplně jasné, do jaké míry lze tyto hodnoty přisoudit černobylským požárům a do jaké míry se jednalo o lokální resuspenzi. Lokální kontaminaci bylo možné kvantifikovat statistickou analýzou variability dubnových koncentrací a na základě poměru $^{40}\text{K}/^{137}\text{Cs}$, který by měl být pro aerosol lokálního původu přibližně konstantní¹³. Pozorované odchylky tohoto poměru na některých lokalitách v ČR pak indikovaly příspěvek černobylského ^{137}Cs , což bylo dále potvrzeno pomocí disperzního modelu (bližší diskuze je uvedena v suplementu RO5 publikace (**Masson et al., 2021**)).

Kromě resuspenze je dalším konkurenčním procesem k depozici i proces konverze mezi plynnou a aerosolovou formou některých radionuklidů. Typické je to v případě

¹³ I za stabilních lokálních podmínek je použití poměru $^{40}\text{K}/^{137}\text{Cs}$ dále limitováno dalšími faktory, jako je například vysoká koncentrace pylu v ovzduší, nebo transport saharského písku do monitorovacího místa. Obě okolnosti mohou způsobit významné odchylky od běžných hodnot $^{40}\text{K}/^{137}\text{Cs}$ (**Bunzl et al., 1993; Karlsson et al., 2008**).

^{131}I , který se ovzduší vyskytuje i mimo havarijní situace v důsledku činnosti klinických pracovišť nukleární medicíny, nebo výrobních závodů produkujících medicínský ^{131}I .

Plynné radioizotopy jódu se v ovzduší mohou vyskytovat jak v anorganické (I_2 , HIO , HI), tak v organické formě (CHI_3 , CH_2I_2), přičemž díky své vysoké reaktivitě interagují s dalšími atmosférickými kontaminanty (oxidy dusíku, ozón,...) a dochází k jejich sorpci na atmosférický aerosol. Heterogenní interakce plynného jódu s aerosolem je proces s komplikovanou dynamikou, která závisí na ročním období, denní době, koncentraci a formě uvolněného jódu apod. Podcenění tohoto procesu může významně podhodnotit predikovanou depozici radioizotopů jódu (**Fortin et al., 2019**). Modely šíření pro operační použití zřídka obsahují chemický modul, který by zahrnoval kompletní popis adsorpce/desorpce plynného radiojódu a často se tak jeho plynná a aerosolová složka modelují jako nezávislé entity.

1.3.2. MODELOVÁNÍ ATMOSFÉRICKÉHO TRANSPORTU AEROSOLU

Přestože je vertikální rozsah zemské atmosféry zhruba 100 km, pro transport antropogenních polutantů si obvykle vystačíme s prvními 10 km. To je dáno jak vertikálním teplotním gradientem, tak přítomností vody a turbulentního proudění v blízkosti povrchu Země, kteréžto dávají vzniknout jevům, jež laická veřejnost souhrnně označuje jako počasí. Z pohledu fyzikálního popisu je nejkomplicovanější částí troposféry tzv. mezní vrstva, kde v důsledku tření s povrchem Země dochází k turbulentnímu promíchávání. To je nejintenzivnější v její dolní části a nejméně intenzivní v oblastech nejbliže a nejdále povrchu. Nad mezní vrstvou leží oblast tzv. volné atmosféry, kde proudění již není povrchem zásadně ovlivněno a jeho rychlost je dána dominantně geostrofickým větrem.

Šíření kontaminace v atmosféře je obvykle modelováno ve formalismu K-teorie, popisující atmosférický transport advekčně-difúzní rovnicí:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -u \frac{\partial C}{\partial x} - v \frac{\partial C}{\partial y} + K_{xy} \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \lambda C + S$$

kde C je koncentrace aerosolu, u, v jsou horizontální složky rychlosti proudění vzduchu, K_{xy} resp. K_z je horizontální, resp. vertikální koeficient turbulentní difúze,

v parametru λ jsou obsaženy depoziční procesy a radioaktivní přeměna a člen S představuje zdrojový člen kontaminace.

Turbulentní promíchávání je zde popisováno analogicky s Fickovým formalismem molekulární difúze s tím rozdílem, že je zde uvažováno jako anizotropní proces. Tato anizotropie vzniká v důsledku teplotního gradientu, kdy různé fyzikální mechanismy ovlivňují disperzi v horizontálním a jiné ve vertikálním směru. Parametrizace K_z je pak často v atmosférických modelech založena na Moninově–Obuchovově teorii podobnosti (**Obukhov, 1971**).

Řešení transportní rovnice je na vzdálenosti větší než desítky km¹⁴ nejčastěji prováděno v rámci eulerovského nebo lagrangeovského přístupu. V eulerovském pojetí je transportní rovnice řešena přímo diskretizací modelové domény. Výstupem je pak hodnota koncentrace polutantu v uzlových bodech definované mřížky. Výhodou tohoto přístupu je přímočaré zahrnutí depozice, chemických reakcí, radioaktivní přeměny i většího počtu zdrojů. Cenou obvykle bývají vyšší výpočetní nároky a nežádoucí efekt numerické difúze.

Lagrangeovský formalismus popisuje šíření v souřadné soustavě spojené s modelovanou částicí (*vzduchovou parcelou*). Lagrangeovský model typicky z místa úniku generuje množství částic a jeho přímým výstupem jsou jejich individuální trajektorie. Turbulentní difúze je zde modelována stochasticky v rámci jednotlivých trajektorií. Koncentrace kontaminantu je pak dána statistikou částic v dané dlaždici geografické domény modelu. Lagrangeovské modely obvykle nejsou ideální pro scénáře s více zdroji, kde prudce roste jejich výpočetní náročnost. Oproti eulerovským modelům ale poskytují i trajektorie částic, které lze jednoduše simulovat i zpětně v čase, čehož je v oblasti environmentálního modelování využíváno pro identifikaci zdrojů znečištění (**Fleming et al., 2012**).

Dnešní atmosférické transportní modely často kombinují různé přístupy výpočtu. Například model Hysplit umožňuje přechod mezi částicovou a *puff* reprezentací nebo

¹⁴ Pro lokální popis z dobře definovaného zdroje, jako je například komín, se často používá řešení za zjednodušujících předpokladů stacionárního proudění a fixního zdrojového členu ve formě gaussovské vlečky. Výhodné je zejména použití pouze lokálního popisu meteorologické situace. Nicméně pro modelování transportu na vzdálenosti větší než desítky km je tento přístup zcela nevhodný.

použití globálního Eulerovského modelu (GEM) (Stein, Draxler, Rolph, Stunder, Cohen, Ngan, et al., 2015). Konkrétní nastavení je pak dáno parametry zadání a optimalizací výpočetní náročnosti.

1.3.3. INVERZNÍ ATMOSFÉRICKÉ MODELOVÁNÍ

V případě detekce radioaktivní kontaminace neznámého původu je lokace jejího možného zdroje klíčová otázka, jejíž řešení spadá do kategorie problémů tzv. inverzního modelování. Lokaci zdroje, nebo i kompletní zdrojový člen odhadujeme na základě monitorovacích dat rozprostřených jak v prostoru, tak v čase pomocí jak disperzního, tak trajektoriového přístupu. Situace je obvykle komplikována nejistotami měření, neúplnými daty a jejich nedostatečným časovým/prostorovým rozlišením.

Při použití disperzního modelování se obvykle vychází z předpokladu, že mezi zdrojovým členem a monitorovacím místem existuje v daném místě a čase lineární souvislost. Prostřednictvím formalismu tzv. SRS matice (*source – receptor sensitivity*) je tato souvislost vyjádřena vztahem:

$$y = Mx$$

kde y představuje vektor jednotlivých měření, M je SRS matice s citlivostmi hypotetických jednotkových úniků na jednotlivá měření (získaná disperzním modelem) a x představuje odhadovaný zdrojový člen.

Triviální řešení linearizované rovnice metodou nejmenších čtverců nelze dobře použít kvůli špatné podmíněnosti úlohy, která vede k silně nestabilnímu řešení. Východiskem může být regularizace problému, při níž klademe na řešení další požadavky, jako je například nezápornost, hladkost apod.

Řešení lze odhadnout na základě minimalizace vhodně zvoleného optimalizačního kritéria J , které zpravidla zahrnuje odchylky měření od modelové predikce a regularizační funkci $g(x)$

$$J = \|y - Mx\|^2 + g(x)$$

Konkrétní volba $g(x)$ může mít například podobu Tichonovovy regularizace:

$$g(x) = \alpha \|x\|^2$$

Tímto způsobem jsou penalizovány vysoké hodnoty zdrojového členu. Použití tohoto přístupu ale vyžaduje *vhodně* zvolený koeficient α , na kterém řešení silně závisí.

Alternativou může být ekvivalentní formulace prostřednictvím bayesovského přístupu, který uvažuje pravděpodobnostní model měření, typicky na základě Gaussovského rozložení šumu apod. Odhad parametrů bayesovského modelu může být založen například na variačním principu, případně na různých variantách Monte Carlo metod. Oproti optimalizačnímu přístupu výše je možné odhadnout parametry pouze na základě znalosti dat. Tento přístup byl s úspěchem aplikován například k lokaci zdroje ^{106}Ru detekovaného v ovzduší v roce 2017, kdy bylo propojeno online aerosolové monitorování SÚRO s LS-APC¹⁵ modelem ÚTIA AVČR. Podrobnosti včetně popisu konstrukce inverzního modelu a odkazů na související publikace jsou uvedeny v práci (Tichý et al., 2021).

Použití disperzního inverzního modelování je limitováno na situace, kdy je doména úlohy dostatečně hustě pokryta monitorováním. V časně fázi po detekci kontaminace je tak jejich použití značně omezeno a ke slovu se obvykle dostává přístup založený na modelování zpětných trajektorií do místa měření. Samotná jedna trajektorie sice neposkytuje o lokaci zdroje příliš mnoho užitečných informací, ale ve spojení s monitorovacími daty se jedná o užitečný nástroj pro rychlý vizuální odhad možné polohy zdroje. S rostoucím počtem generovaných trajektorií se stává tento odhad přesnějším, ale jednoduchá vizuální analýza přestává být praktická. Pro účely hodnocení velkého souboru (až desítek tisíc) zpětných trajektorií byly postupem času vyvinuty dedikované statistické metody umožňující snížit dimenzionalitu dat a odkrýt hlavní potenciální oblasti, ze kterých se kontaminace šíří do receptoru. Takto identifikované oblasti mohou zároveň sloužit jako prvotní odhad pro sofistikovanější disperzní modely. Přehled metod zpracování trajektoriových dat prezentují práce (Fleming et al., 2012; Hopke, 2016), jejich konkrétní implementace např. v jazyce R je pak blíže popsána v dokumentaci populární knihovny *openair* (D. Carslaw, 2022; D. C. Carslaw & Ropkins, 2012).

¹⁵ Inverzní pravděpodobnostní model – *least squares with adaptive prior covariance*.

Příkladem trajektoriové statistiky jsou různé varianty PSCF metody (*Potential Source Contribution Function*), která popisuje prostorovou distribuci pravděpodobné lokace zdroje pomocí počtu průchodů „kontaminovaných“ trajektorií buňkou geografické mřížky:

$$PSCF_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}}$$

Zde n_{ij} představuje počet průchodů trajektorií danou buňkou se souřadnicemi i, j a m_{ij} označuje počet průchodů trajektorií s asociovanou koncentrací vyšší než jistý zvolený percentil. Volba percentilu oddělující vyšší a nižší koncentrace je pro správný odhad zásadní, zejména v případě, kdy je potřeba odlišit vliv vzdáleného zdroje od lokálního pozadí – příkladem může být událost z roku 2017, kdy vlivem inverzního charakteru počasí došlo ke zvýšení lokálního pozadí daného medicínskými zdroji a zároveň docházelo k transportu ze vzdálené lokace (Masson et al., 2018). Limitace PSCF spočívá v nezahrnutí disperzních a depozičních mechanismů. Navíc je nutné provést korekci na centralizaci (v místě receptoru jsou trajektorie hustější). Modifikace metody, které odstraňují některé nedostatky PSCF, jsou založené na době setrvání trajektorie v dané buňce a odstranění nutnosti pevně volené koncentrační meze (například metoda CWT (*Concentration weighted trajectory*)).

Další možností analýzy souboru trajektorií je metoda RTWC (*Residence Time Weighted Concentration*), kterou lze použít pro odlišení významných zdrojů kontaminace i v případě vícezdrojového scénáře. Metoda je založena na předpokladu, že se zdroj nemůže nalézat podél trajektorie s nulovou asociovanou koncentrací v receptoru. Na základě toho jsou pak relativní příspěvky dané buňky (získané např. pomocí některé z variant PSCF) v iterativním procesu redistribuovány.

Nejkomplexnější přístup je QBTA (*Quantitative Bias Trajectory Analysis*), která bere v úvahu distribuci koncentrace v okolí trajektorie i depoziční procesy. Zjednodušená verze bez depozice je označována jako SQBTA a je založena na předpokladu, že disperze podél trajektorie je přibližně gaussovská s lineárně rostoucí standardní odchylkou zpět v čase. Pravděpodobnostní distribuce SQTBA je pak konstruována analogicky jako v případě PSCF a jejích variant. Použitelnost QTBA komplikuje

nutnost odhadnout rychlost disperze podél trajektorie, poměrně velká výpočetní náročnost a obtížná fyzikální interpretace.

Užitečnou informaci lze získat i prostřednictvím klastrové analýzy, kdy jsou trajektorie seskupovány podle jejich podobného původu. Trajektorie jsou rozděleny do menšího počtu klastrů s očekáváním, že se nejistoty asociované s jednotlivými trajektoriemi v průměru vyruší. Často jsou využívány algoritmy pro nehierarchické shlukování, jako je např. *K-means*, Wardova metoda pro hierarchické shlukování, nebo algoritmy založené na neuronových sítích.

2. POKROČILÉ MONITOROVACÍ METODY

Obsah: Kapitola shrnuje princip a použití semikontinuálních automatických monitorovacích systémů. Stručně jsou představeny výstupy výzkumného projektu, v rámci kterého byla vyvinuta jejich nízkoprůtoková varianta. Dále jsou nastíněna teoretická východiska pro metody plně kontinuálního monitorování a jejich detailní popis v rámci prezentace výsledků projektu VIRA řešeného v období 2020–2021.

Idealizovaným cílem monitorování radioaktivity v ovzduší je co nejrychleji detekovat co možná nejnižší koncentrace radionuklidů. Reálně však musíme přistoupit na určitou formu kompromisu, protože požadavky na maximální včasnost detekce a současně maximální citlivost měření se vzájemně vylučují. V současné praxi se tento kompromis ustálil na odběrech aerosolu o délce několika dnů s využitím velkoobjemových aerosolových kolektorů ($>100 \text{ m}^3/\text{h}$) a několikadenního měření ve specializované laboratoři metodami vysoce citlivé polovodičové spektrometrie záření gama. Sloučené vzorky pokrývající delší časové období (např. čtvrtletí) jsou následně analyzovány radiochemickými metodami pro stanovení dalších zájmových radionuklidů.

Obecně lze konstatovat, že prodleva mezi možným příchodem kontaminace a reportováním prvních výsledků analýzy se pohybuje v řádech dnů až týdnů, což dlouhodobě motivuje úsilí na poli vývoje rychlých metod s využitím automatických systémů.

V následujících podkapitolách jsou představeny jak současné standardní monitorovací metody, tak jejich inovace. **Kapitola 2.2** se věnuje semikontinuální autonomní systémy a **kapitola 2.3** prezentuje přístup plně kontinuálního monitorování. Uvedené metody jsou původními výsledky několika výzkumných projektů řešených v období 2015–2022 v SÚRO.

2.1. STANDARDNÍ METODY MONITOROVÁNÍ

Úzká mezinárodní spolupráce, ať už v rámci formálních struktur při IAEA, nebo neformální výměny know-how například uvnitř skupiny RO5, vedla v posledních desetiletích ke konvergenci jak monitorovacích metod, tak přístrojového vybavení napříč jednotlivými státy Evropy i jinde ve světě. Přestože se tedy následující popis

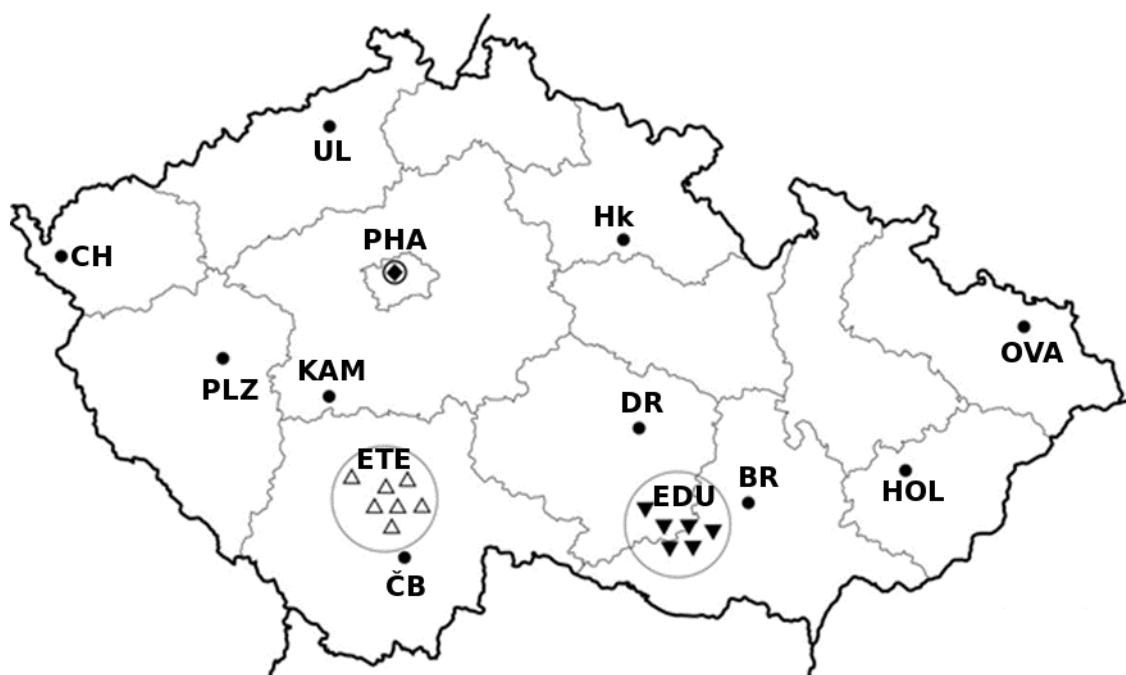
týká metod používaných v České republice, lze jej zobecnit i na další národní či mezinárodní monitorovací síť.

2.1.1. ODBĚR VZORKŮ

Vzorkování je zajištěno velkoobjemovými kolektory aerosolu s průtokem v rozmezí přibližně 50–1000 m³/h v síti monitorovacích míst rozmístěných v různých částech ČR, viz schéma na **Obrázku 2.1-1**.

Filtrace je prováděna pomocí filtrů s vysokou účinností záchytu, které jsou vyrobeny z polymerních vláken. Účinnost záchytu je závislá na vstupní rychlosti vzduchu a pro běžný atmosférický aerosol je ve srovnání se sklovláknovými filtry, které představují zlatý standard v aerosolové filtraci, o něco nižší, jak ilustruje **Obrázek 2.1-2**. Na druhou stranu, výhoda polymerních filtrů spočívá v jejich spalitelnosti, což zásadně usnadňuje následné radiochemické zpracování.

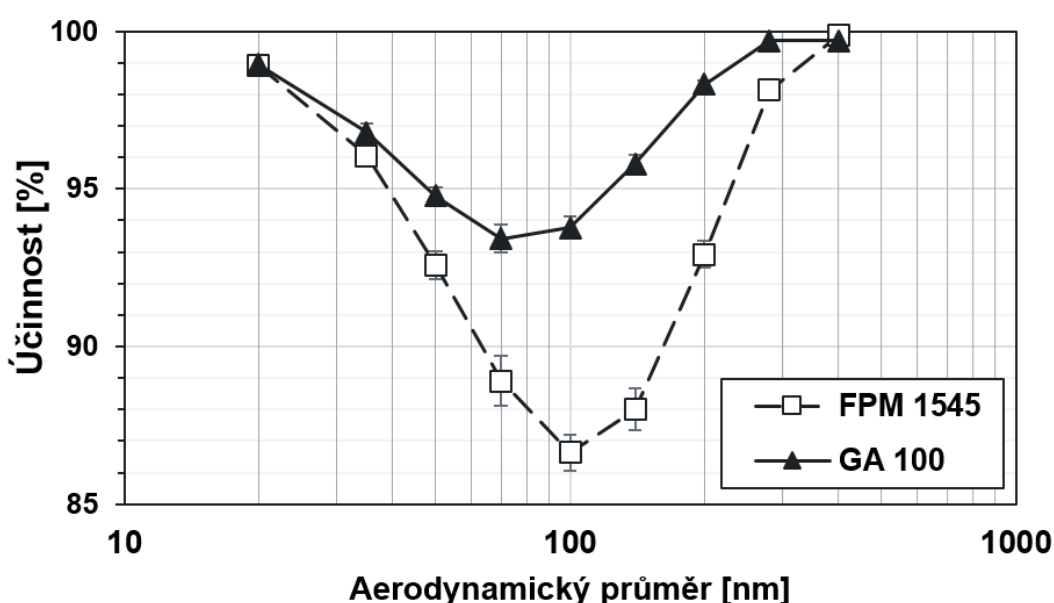
Obrázek 2.1-1 Rozmístění monitorovacích míst kontaminace ovzduší v ČR.



Vysvětlivky: CH – Cheb (150 m³/h), PLZ – Plzeň (150 m³/h), KAM – Kamenná (150 m³/h), UL – Ústí nad Labem (150 m³/h), PHA – Praha (2 x 900 m³/h), ČB – České Budějovice (150 m³/h), ETE – Elektřárna Temelín (40 m³/h), HK – Hradec Králové, DR – Dolní Rožná (150 m³/h), EDU – Elektřárna Dukovany (40 m³/h), BR – Brno (150 m³/h), HOL – Holešov (150 m³/h), OVA – Ostrava (150 m³/h).

Standardní délka odběru aerosolu je 3–7 dnů. V případě zvýšené prašnosti v ovzduší je z důvodu zanášení filtru interval odběru zkracován. Stejně tak je tomu v případě detekce neobvyklých hodnot umělých radionuklidů nebo havarijního monitorování. Délku odběru lze zkrátit na přibližně 12–24 h. Vyšší frekvence už většinou naráží na logistické meze provozu laboratoře a času potřebného k analýze.

Obrázek 2.1-2 Účinnost záchytu aerosolu filtrem v závislosti na aerodynamickém průměru částic pro lineární rychlost 55 cm/s, což v testovacím uspořádání představovalo průtok přibližně 10 m³/h.¹⁶



2.1.2. ANALÝZA VZORKŮ

Po ukončení odběru je filtr ponechán 2–3 h v sušičce při 85 °C. Důvodem je jednak gravimetrické stanovení prašnosti a jednak pokles aktivity krátkodobých produktů přeměny radonu (zejména ²¹⁴Pb a ²¹⁴Bi), jejichž vysoká aktivita nepříznivě ovlivňuje citlivost měření.

Po vysušení je filtr převeden do kalibrační geometrie ve formě slisovaného disku nebo složeného filtru. Pro ilustraci: s použitím 60t hydraulického lisu lze připravit disky o rozměrech $h = 4 \text{ mm}$, $D = 80 \text{ mm}$ a hustotě přibližně 1,5 g/cm³.

¹⁶ Měření bylo provedeno Oddělením chemie a fyziky aerosolů, ÚCHP AVČR v roce 2017 pro potřeby projektu HAMRAD, viz příloha A.

Takto připravený vzorek je následně měřen¹⁷ po dobu přibližně 4 h na HPGe detektoru. Získané spektrum je poté sekvenčně vyhodnocováno s různými knihovnamí radionuklidů kvůli eliminaci spektrálních interferencí. Výsledky této předběžné analýzy jsou reportovány ihned a obsahují objemové aktivity zájmových radionuklidů ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁷Be, ²²Na, ²¹⁰Pb (případně dalších, pokud byly pozitivně detekovány). Přírodní radionuklidy zde slouží zejména pro interní kontrolu kvality měření a případně pro vysvětlení neobvyklých hodnot na základě specifických aktivit v prachu nebo na základě typických poměrů mezi těmito radionuklidy.

Běžně lze touto předběžnou analýzou dosáhnout citlivosti detekce¹⁸ na úrovni desítek $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Analýza v centrální laboratoři SÚRO Praha je z důvodu výkonnějších aerosolových kolektorů a HPGe s vysokou relativní účinností detekce ($\approx 150\%$) přibližně desetkrát citlivější.

Po předběžné analýze jsou filtry přibližně další 3 dny ponechány dalšímu poklesu dceřiných produktů radonu s delším poločasem přeměny (²¹²Pb, ²¹²Bi, ²⁰⁸Tl). Po uplynutí této doby jsou do jednoho vzorku sloučeny filtry za kalendářní týden a následně stejnou metodou měřeny po dobu přibližně jednoho týdne. Tímto měřením je obvykle dosaženo detekčního limitu na úrovni jednotek $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (v regionálních laboratořích) až desítek nBq/m^3 (v SÚRO Praha). Týdenní hodnoty jsou standardně importovány do databáze MonRaS ke zveřejnění¹⁹.

2.2. AUTONOMNÍ SYSTÉMY PRO SEMIKONTINUÁLNÍ MONITOROVÁNÍ

Standardní postup analýzy radioaktivních aerosolů v atmosféře, jak je popsán v **kapitole 2.1**, naráží na limity aplikovatelnosti v případě potřeby vysoké frekvence měření (několikrát za den) nebo tehdy, není-li monitorovací lokalita vybavená spektrometrickou laboratoří. Za těchto podmínek se uplatňují automatizované systémy, které zajišťují jak odběr vzorku, tak jeho měření a analýzu. Princip jejich

¹⁷ Pouze v monitorovacích místech, ve kterých se zároveň nalézá spektrometrická laboratoř. Z ostatních míst jsou vzorky sváženy, nebo zasílány poštou a screeningové měření u nich není možné.

¹⁸ Vyjádřeno tzv. *minimální významnou aktivitou* (MVA) podle normy ISO 11929 pro referenční radionuklid ¹³⁷Cs

¹⁹ MonRaS – monitorování radiační situace, <https://www.sujb.cz/aplikace/monras/>

funkce je do značné míry identický se standardní procedurou, která je v maximálním možném rozsahu automatizovaná.

V současnosti se automatická zařízení často používají například při monitorování výpusti z jaderných zařízení, kde slouží ke kontinuálnímu sledování uvolněné koncentrace aerosolů nebo vzácných plynů do ovzduší. Jejich použití v rámci environmentálního monitoringu mimo průmyslové provozy není tak časté. Většinou se uplatňují v odloučených lokalitách, pokud je nutné zajistit autonomní provoz po dobu minimálně několika dní.

Přibližně třetina stanic IMS je vybavena nějakou variantou zařízení umožňující bezzásahový provoz, mezi nepoužívanější systémy patří RASA a CINDERELLA²⁰. Principiální rozdíly mezi oběma systémy nejsou, liší se jen ve způsobu transportu použitého filtru na detektor. V RASA je to zajištěno postupným rolováním filtru kolem detektoru (podobně jako u zařízení založených na principu filtrování skrz nekonečnou pásku) a systém CINDERELLA je vybaven mechanickým manipulátorem, který z filtru vyřezává disky, jež jsou po kompletaci přeneseny na detektor. V IMS radionuklidové stanice monitorují s periodou odběru 24 h. Dalších 24 h jsou filtry ponechány v mezipoloze k poklesu aktivity přírodních radionuklidů a následuje 24h měření na stíněném HPGe detektoru. Typicky je tímto způsobem dosahováno citlivosti na úrovni jednotek $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, což odpovídá citlivosti screeningového měření popsaného ve standardním laboratorním postupu v **Kapitole 2.1**.

Protože je výsledná citlivost měření dána jednak délkou měření, jednak reziduální aktivitou dceřiných produktů radonu (DPR) na filtru, vyvstává otázka, jak časově optimalizovat celý postup analýzy. Tento problém byl řešen v rámci projektu HAMRAD (*Havarijní měřič radioaktivního aerosolu s dálkovým přenosem dat*), jehož cílem bylo navrhnout a zkonstruovat autonomní monitorovací systém s nízkými energetickými nároky na provoz a s citlivostí detekce na úrovni jednotek mBq/m^3 pro 24h monitorovací interval. Prototyp HAMRAD je zobrazen na **Obrázku 2.2-1**.

²⁰ RASA – Radionuclide Aerosol Sampler/Analyzer, zařízení vyvinuté v 90. letech v Pacific Northwest National Laboratory (USA), viz (Forrester et al., 2013). CINDERELLA – zařízení vyvinuté rovněž v 90. letech pro potřeby IMS finským STUK (Radiation and Nuclear Safety Authority). V současnosti dostupné i jako komerční produkt firmy Senya.

Obrázek 2.2-1 Systém HAMRAD



Měření vzorku je zajištěno HPGe detektorem v Pb-Cu stínění s tím, že doba odložení filtru před měřením je optimalizována vzhledem k deponované aktivitě DPR. To je zajištěno algoritmem, který postupně ukládá dílčí, několikaminutová spektra. Výsledné spektrum je pak získáno jako optimální součet posledních N dílčích spekter vzhledem k dosaženému detekčnímu limitu pro zájmový radionuklid. Zároveň byl zkonstruován model závislosti MDA na koncentraci radonu v ovzduší, kterým lze kvantifikovat variabilitu citlivosti detekce např. pro různá hypotetická monitorovací místa, je-li k dispozici lokální

časová řada OAR.

Variabilita OAR v SÚRO Praha se projevila na MDA faktorem 2–4 (mezikvartilové rozpětí). Vhodným nastavením odběrového režimu lze tuto variabilitu do značné míry redukovat – v případě 24h odběrů je např. žádoucí, aby výměna filtrů probíhala během denního minima OAR, které typicky nastává v časně odpoledních hodinách.

Absolutní detekční účinnost (Bq/vzorek), které HAMRAD dosahuje, je srovnatelná s předběžným laboratorním měřením. Řádově nižší průtok se samozřejmě projeví úměrně vyšší MDA vyjádřenou pomocí objemové aktivity na úrovni desetin mBq/m^3 pro 12h monitorovací interval.

Typická aplikace HAMRAD v MRS může být jako „standby“ zařízení, které rutinně pracuje s delšími odběrovými intervaly (např. týden) a sníženým průtokem. V okamžiku detekce zvýšené aktivity v ovzduší v lokalitách vybavených citlivějšími metodami pak může být HAMRAD dálkově aktivován, jeho průtok navýšen a odběrové intervaly zkráceny.

Bližší popis funkcionality HAMRAD a optimalizace spektrometrické analýzy jsou uvedeny v publikacích (Hýža et al., 2019; Rulík et al., 2018).

2.3. PRINCIPY ONLINE MONITOROVÁNÍ

Ani použití semikontinuálních monitorovacích zařízení zcela neodstraní prodlevu mezi koncem odběru a reportováním výsledků. Navíc je použití složitých manipulačních mechanismů často úměrné jejich poruchovosti a náročnosti na údržbu. Proto byla v posledních cca 10 letech v SÚRO zkoumána možnost měření v plně online režimu, ve kterém je aerosolový filtr snímán gama spektrometrem již během odběru. Hlavní překážkou je v tomto případě vysoké a proměnlivé radiační pozadí tvořené dceřinými produkty radonu, které zásadním způsobem znesnadňuje spektrometrickou analýzu.

V prvních fázích vývoje byl pro detekci použit scintilační NaI(Tl) detektor, jehož špatná energetická rozlišovací schopnost představovala další komplikující faktor. V principu je možné tento problém řešit dekonvolučními metodami s použitím pozadřových komponent získaných Monte Carlo simulací. K pozadí přitom nepřispívají jen DPR na filtru, ale i přírodní RN deponované na povrchy v okolí detektoru (zejména při dešti), což nakonec vedlo k opuštění tohoto přístupu. Dekonvoluce pomocí Monte Carlo simulovaných spekter se ukázala jako ne zcela spolehlivá metoda vyžadující navíc nemalé úsilí při budování modelu.

Alternativním přístupem je využití korelační struktury online spekter. Zde je využito toho, že deponované radionuklidy jsou spolu geneticky svázány ($^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$; $^{212}\text{Pb} \rightarrow ^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{208}\text{Tl}$), a četnosti impulsů ve vybraných ROI spolu korelují. Vhodnou volbou ROI je pak možné sestavit *oknový model* pro odhad přírodního pozadí v zájmové oblasti spektra:

$$CPS = \sum_{k=0}^n a_k CPS_k$$

CPS zde představuje predikovanou četnost impulsů pozadí v analyzované ROI, CPS_k jsou četnosti impulsů v jednotlivých ROI (oknech) popisujících přírodní pozadí a a_k jsou koeficienty lineárního modelu určené na základě naměřených dat. Potřebný počet komponent CPS_k byl v závislosti na analyzovaném radionuklidu typicky v rozmezí 5–15. Vhodným přístupem k jejich určení se ukázaly metody robustní lineární regrese

(L_1 a L_2 regularizace), které se elegantně vypořádávají s problémem odlehlých hodnot a přeučení modelu.

Výhodou tohoto přístupu je, že je kompletně založen na datech a nevyžaduje žádné další vstupy. Výstupem pak může být např. *p-hodnota* statistického testu zvoleného pro rozhodnutí, zda se pozorovaná četnost impulsů významně odlišuje od predikované.

Specifická této metody je ale nízká a pro více interferujících radionuklidů ji nelze použít ke spolehlivé identifikaci. Nicméně pro iniciaci nespecifického alarmového hlášení je tento hrubý přístup poměrně efektivním nástrojem.

Metody založené na singulárním rozkladu

Dalším logickým krokem bylo využití celého rozsahu spektra, nikoliv jenom několika ROI jako v oknovém přístupu popsaném výše. Cílem tedy bylo zužkovat veškerou dostupnou informaci, kterou poskytuje korelační struktura spektra NaI(Tl) detektoru na úrovni jednotlivých kanálů (rozsah byl typicky nastaven na 1024 kanálů). Na základě numerických experimentů se ukázalo, že je užitečné nahlížet na problém určení pozadových komponent optikou statistických metod spadajících do rodiny PCR (*principle component regression*). Pro implementaci PCR přístupu byl zvolen algoritmus NASVD (*noise-adjusted singular value decomposition*), který ještě navíc zohledňuje poissonovské rozložení šumu ve spektru. Tato metoda byla v minulosti použita například k hodnocení spekter z letecké spektrometrie, viz (**B. Minty & Hovgaard, 2002; B. R. S. Minty et al., 1998**). Pro hodnocení online spekter NaI(Tl) detektoru se ukazuje jako velmi výhodná, protože účinně řeší problémy spojené s interferencí radionuklidů.

Obecně lze PCR přístup aplikovat na širokou třídu problémů, jejichž společným rysem je potřeba extrahovat užitečnou informaci z vysoce korelovaných datasetů, která vyvstává obecně u jakéhokoliv kontinuálního/opakovaného měření. Vyvinuté metody pro aerosolová měření tak bylo možné například s minimem úprav aplikovat na online monitorování radioaktivity ve vodních tocích, viz (**Fejgl & Hýža, 2019, 2020**).

Bližší popis implementace PCR analýzy online aerosolových měření je uveden v práci (**Hýža & Rulík, 2017**) a podrobně dále v textu v diskuzi metod aplikovaných v projektu VIRA.

2.4. METODY ONLINE SPEKTROMETRIE S VYSOKÝM ROZLIŠENÍM

V roce 2017 byl online systém v SÚRO Praha v rámci interního výzkumu doplněn o spektrometrický modul obsahující elektricky chlazený HPGe detektor. Získaná spektra byla ukládána v intervalech 5–10 minut na dedikovaný server v sousedící laboratoři přes LAN propojení.

V důsledku detekce ^{106}Ru v roce 2017, která vzbudila i značný mediální ohlas, vyvstala navíc potřeba zautomatizovat metody inverzního atmosférického modelování a propojit je s citlivou spektrometrickou analýzou. Tento problém byl předmětem navazujícího výzkumného projektu VIRA, jehož závěry a postup vývoje jsou zpracovány v této kapitole. Autor předložené disertační práce byl hlavním řešitelem tohoto projektu.

2.4.1. PŘÍSTROJOVÉ VYBAVENÍ A KALIBRACE

Zkušební provoz prototypu spektrometrického modulu odhalil některé jeho nedostatky, zejména s ohledem na zajištění stabilních podmínek pro HPGe detektor. Z důvodu přehřívání v letních měsících bylo nutné zařízení opakovaně odstavit. Přestože byly učiněny pokusy s aplikací reflexní fólie ke snížení vlivu sálavého tepla a instalovány výkonnější ventilátory, provoz byl nadále poruchový. Na základě těchto zkušeností byla navržena nová verze modulu s automatickým řízením vnitřní teploty a vylepšenou manipulační mechanikou, která byla instalována v areálu SÚRO Praha v roce 2021, viz *Obrázek 2.4-1*.

Energetický rozsah detektoru pokrývá oblast 50–3000 keV s rozlišením 16 384 kanálů. Účinnostní kalibrace detektoru pro kvantifikaci deponované aktivity na filtru byla provedena experimentálně s využitím uměle kontaminovaného aerosolového filtru. Kalibrační filtr o rozměrech 570 x 460 mm byl připraven nakapáním etalonového roztoku (mix radionuklidů: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{51}Cr ; aktivita jednotlivých RN se pohybovala v jednotkách až desítkách kBq) do cca 250 bodů pravoúhlé mříže. Při konstrukci účinnostní křivky bylo postupováno podle standardního zkušební postupu SZP11 (**Dragounová, 2020**).

Obrázek 2.4-1 Upravený prototyp spektrometrického modulu s HPGe detektorem v areálu SÚRO Praha, 2021



2.4.2. POPIS MĚŘENÝCH DAT

Od roku 2017 byla nabírána spektra v intervalu 5–10 min. Ta byla postupně prověřena, zda nejsou porušená, nebo zda neobsahují parazitní signál způsobený například manipulací se zdroji IZ v okolí odběrového zařízení. Ačkoliv nebylo možné zrekonstruovat úplnou časovou řadu v důsledku plánovaných odstávek zařízení, poruch nebo jiné experimentální činnosti, bylo dosaženo dobré reprezentativnosti změřených spekter. Ve výsledném datasetu je zahrnuto přibližně 120 tis. spekter odpovídajících různým ročním obdobím a meteorologickým jevům (silné bouřky vyplavující přírodní radioaktivitu z atmosféry apod.). Krátká doba nabírání spekter (5–10 min.) pak zaručovala i dobré pokrytí různých fází odběrového cyklu a tedy i pokrytí saturační křivky krátkodobých DPR (poločas přeměny $^{214}\text{Bi} = 20 \text{ min}$).

Ve spektrech dominují právě krátkodobé DPR, jejichž aktivita se v závislosti na koncentraci radonu v atmosféře a fázi odběrového cyklu pohybuje v řádovém rozmezí 10^2 – 10^5 Bq . Významně fluktuují i aktivitní poměry mezi jednotlivými DPR, které pak určují tvar výsledného spektra, viz **Obrázek 2.4-2**.

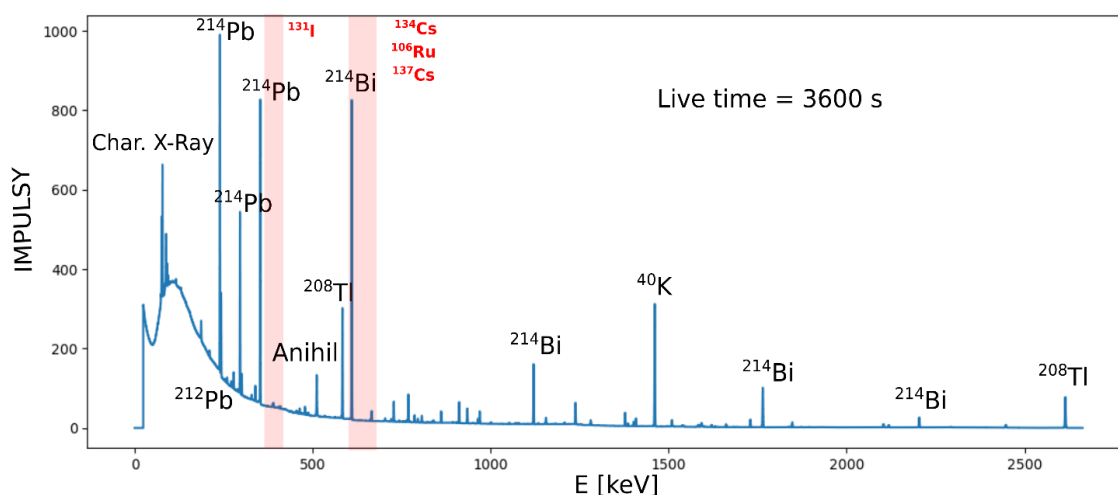
Příspěvek přírodních radionuklidů do měřeného spektra pochází i ze součástí odběrového zařízení a jeho okolí. Významně se projevuje zejména ^{40}K přítomný v okolní půdě a stavebním materiálu. Specifikem odběrového místa SÚRO Praha je i skutečnost, že jsou zde v paralelním provozu dva aerosolové kolektory *Snow White*

(pouze jeden je vybaven HPGe spektrometrickým modulem), a proto pozorujeme i příspěvek RN zachycených na sousedním zařízení vzdáleném cca 2 m. Problematika parazitního signálu pocházejícího z okolních kontaminovaných povrchů byla rovněž okrajově prozkoumána²¹. Dalším zdrojem signálu nepocházejícího z RN na filtru je složka sekundárního kosmického záření, které je modulováno sluneční aktivitou.

V oblasti strojového učení je riziko přeučení modelu obvykle redukováno rozdělením primárních dat do několika disjunktních podmnožin, které v průběhu konstrukce a vyhodnocování modelu slouží k různým účelům. Získaná online spektra byla rozdělena následovně:

1. **Trénovací dataset** obsahující 70 % původních dat, na základě kterého byl budován statistický model pro odečet přírodního pozadí
2. **Validační dataset** s 20 % původních spekter pro validaci vytvořeného modelu, tato spektra nebyla v žádném kroku použita pro tvorbu modelu
3. **Testovací dataset** s 10 % původních dat pro výběr finálního modelu

Obrázek 2.4-2 Typické spektrum změřené online systémem v SÚRO Praha; červeně jsou orientačně vyznačeny oblasti, ve kterých se nacházejí významné píky zájmových radionuklidů



²¹ V případě významné radioaktivní kontaminace atmosféry lze předpokládat, že by do měřeného spektra přispívaly jak umělé radionuklidy zachycené na filtru, tak radionuklidy deponované na povrchy kolektoru a jeho okolí. Pro stanovení poměru jednotlivých odezev byl vytvořen zjednodušený Monte Carlo model, na základě kterého je možné simulovat konkrétní scénáře. V období přítomnosti vyšších aktivit v ovzduší je možné bezpečně považovat filtr za dominantní zdroj signálu (v důsledku vysokého průtoku vzduchu), v pozdějších fázích pak může dominovat příspěvek z kontaminovaného okolí, zejména krytu kolektoru.

2.4.3. METODY ANALÝZY ONLINE SPEKTER

Standardní postup hodnocení spekter je typicky založen na lokální analýze (tzv. *píková analýza*), pomocí které jsou píky ve spektru hledány metodami využívajícími derivace spektra (Mariscotti, 1967). Nalezené píky jsou pak porovnány s uživatelskou knihovnou radionuklidů, čímž jsou identifikovány případné zájmové radionuklidy. Hlavním cílem projektu byla včasná identifikace případné kontaminace bez potřeby přesné kvantitativní analýzy (ta je provedena na identickém filtru v laboratoři), a proto nebylo nutné se omezovat na standardní metody, které jsou pro tuto aplikaci nevhodné. A to jednak kvůli nižší citlivosti a jednak proto, že ani přes vynikající energetické rozlišení HPGe detektoru nedokáží úplně eliminovat spektrální interference mezi zájmovými a pozad'ovými radionuklidy. Například spektrum ^{214}Bi obsahuje linku 661.1 keV ($I = 0.054\%$) sice slabou, ale, interferující s 661.66 keV příslušejícími ^{137}Cs . Vzhledem k aktivitám DPR na filtru během odběru, které dosahují i 10^5 Bq, může být i takto nevýznamná linka zdrojem falešně pozitivního alarmu.

Logickým krokem proto byla aplikace PCR metody i na spektra s vysokým rozlišením.

Jak bylo zmíněno výše, měřené spektrum je tvořeno příspěvky kosmického záření a radionuklidů přítomných v blízkosti detektoru. Pro účely další analýzy je tedy spektrum možné modelovat jako lineární kombinaci těchto přispěvatelů:

$$S = \sum_{i=1}^n (\beta_i SKP_i + \varepsilon_i)$$

kde S je analyzované spektrum (vektor o délce počtu kanálů), β_i jsou modelové koeficienty, SKP_i označují spektrální komponenty jednotlivých složek pozadí (vektory stejného rozměru jako S) a ε_i jsou odpovídající chybové členy.

Pokud bychom měli k dispozici spektrální komponenty pozadí (SKP), redukovala by se úloha nalezení koeficientů a_i na lineární regresi například s užitím prosté metody nejmenších čtverců (OLS).

Jak ale nalézt jednotlivé SKP?

Namísto přímé MC simulace můžeme použít postup založený na datech, kdy jsou SKP extrahovány přímo ze souboru pozad'ových spekter. K tomuto účelu se jeví jako nejvhodnější metody založené na redukci dimenze pozad'ového datasetu. Dalším důvodem/motivací k použití této třídy metod je i vysoká kolinearita jednotlivých spekter (velký soubor dat vs. relativně nízký počet fyzikálních SKP).

Užitečným nástrojem pro redukci dimenze trénovacího datasetu je metoda singulárního rozkladu (SVD). Jedná se o standardní nástroj lineární algebry, který je v oblasti strojového učení rutinně a intenzivně využíván. V posledních cca 10 letech byly navíc vytvořeny nové algoritmy umožňující analýzu i velkých objemů dat, což je pro účely této práce stěžejní.

Aproximace matice pozad'ových spekter

Máme-li k dispozici reprezentativní soubor spekter, která neobsahují měřitelnou aktivitu umělých radionuklidů, můžeme je uspořádat do sloupců matice \mathbf{B} . Singulární rozklad pak matici \mathbf{B} ($m \times n$) rozloží na součin jiných tří matic \mathbf{U} , $\mathbf{\Sigma}$, \mathbf{V} takto:

$$\mathbf{B} = \mathbf{U}\mathbf{\Sigma}\mathbf{V}$$

kde \mathbf{U} ($m \times m$) a \mathbf{V} ($n \times n$) jsou reálné unitární matice a $\mathbf{\Sigma}$ ($m \times n$) je matice obsahující nuly všude kromě diagonály, která obsahuje sestupně seřazená nezáporná čísla, tzv. singulární hodnoty. Sloupce matice \mathbf{U} pak obsahují hledané SKP, které se ale od těch fyzikálních liší svým tvarem, nicméně velmi dobře popisují pozorovanou variabilitu signálu.

Pro účely redukce dimenze původní matice \mathbf{B} lze pak vzít pouze prvních k komponent odpovídajících k nejvyšším singulárním hodnotám, které popisují většinu variance pozad'ového souboru. Na základě *Eckart–Youngova teorému (Eckart & Young, 1936)* je známo, že se jedná o nejlepší k -aproximaci původní matice \mathbf{B} (např. ve smyslu Frobeniovy nebo spektrální normy).

Konkrétní implementace SVD algoritmu je v této práci založena na blokovém přístupu, který umožňuje rozdělit matici \mathbf{B} do bloků oddělujících oblasti spektra, které

energeticky odpovídají pozadřovým radionuklidům. SVD faktorizaci lze pak v těchto blocích provést samostatně. Tímto přístupem lze zužítkovat spektrometrický vzhled do problematiky, kdy například v oblasti nad 2500 keV zbytečně nehledáme mnoho komponent, protože bude dominovat příspěvek hlavně od ^{208}Tl . Touto logikou lze předejít zbytečnému přeučení (*overfitting*) modelu. Zároveň může být blokové schéma použito pro redukci objemu dat, kdy lze algoritmus natrénovat pouze na určitou oblast spektra.

Výpočetní složitost SVD faktorizace při použití bidiagonalizačního algoritmu je $O(n^3)$ (Golub & Reinsch, 1970), což je faktor, který zásadně komplikuje praktickou použitelnost metody pro velké datasety²². Díky rozvoji metod strojového učení, kde je SVD hojně využíván, byly v nedávné době do standardních výpočetních knihoven implementovány randomizované (rSVD) a paralelizovatelné verze SVD algoritmu, které dovolují zpracovávat i velké objemy dat. To alespoň v principu umožňuje kontinuální aktualizaci modelu s každým změřeným spektrem. Reálně je ale nutné nová data nejprve důkladně prověřit, aby nedošlo ke „kontaminaci“ trénovacího datasetu, což většinou nelze plně automatizovat.

Princip metody randomizovaného SVD

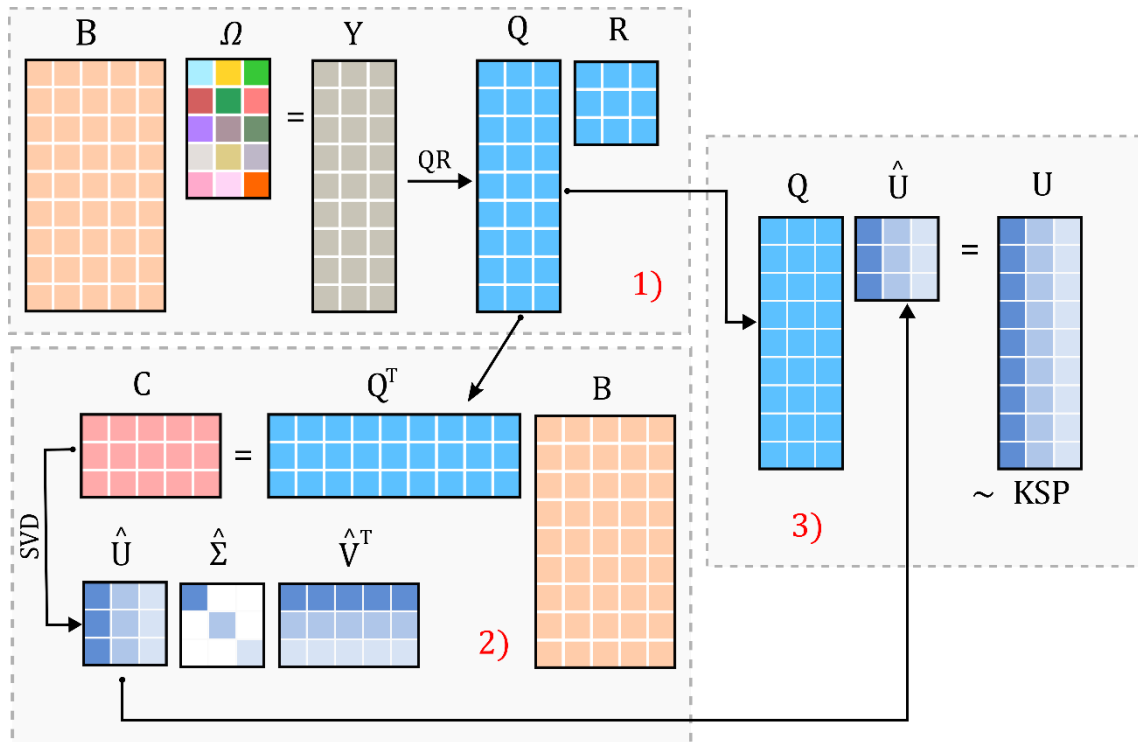
Randomizovaná varianta SVD algoritmu (rSVD) využívá náhodné matice pro vzorkování sloupcového podprostoru původní matice \mathbf{B} . Populární implementace algoritmu, viz (Halko et al., 2011), lze stručně popsat schématem na **Obrázku 2.4-3** (převzato a upraveno z (Erichson et al., 2019)).

V konkrétní implementaci se navíc ještě uvažuje tzv. *oversampling*, kde uvažujeme $k = l + p$ komponent místo původních l , kde p je malé číslo, typicky 5–10. V případě, kdy spektrum matice \mathbf{B} vykazuje pozvolný pokles, je možné navíc aplikovat mocninnou metodu (*power iteration*) stupně q pro penalizaci malých singulárních hodnot (singulární vektory zůstávají touto operací nezměněny). Oba parametry, oversampling p i stupeň iterace q , lze pak v rámci validace modelu upravovat tak, aby

²² Trénovací dataset VIRA obsahuje řádově 10^5 spekter s rozlišením na 16 384 kanálů, což generuje matice o velikosti na úrovni desítek GB, které je nutné pro analýzu udržet v RAM počítače.

bylo dosaženo rozumného kompromisu mezi chybou rekonstrukce spektra a časovou náročností výpočtu.

Obrázek 2.4-3 Schéma rSVD algoritmu založeného na vzorkování sloupcového podprostoru matice trénovacího datasetu.



Popis algoritmu rSVD:

- 1) Vzorkování sloupcového podprostoru B**

Vynásobením matice B náhodnou gaussovskou maticí Ω ($n \times l$). Z výsledné matice Y ($m \times l$) je vytvořena (například QR rozkladem) ortonormální matice Q taková, že $Y = QR$, kde Q má dimenzi ($m \times l$) a R má dimenzi ($l \times l$).
- 2) Singulární rozklad redukované matice C**

Vynásobením $Q^T B = C$ získáme menší matici C ($l \times n$), pro kterou provedeme singulární rozklad, tj. $C = \hat{U} \hat{\Sigma} \hat{V}^T$. Tento rozklad je výpočetně mnohem méně náročný díky redukované dimenzi matice C .
- 3) Rekonstrukce singulárních vektorů (KSP)**

Z matice aproximovaných singulárních vektorů \hat{U} ($l \times l$) je vypočtena původní matice singulárních vektorů U ($m \times l$) jako $U = Q \hat{U}$

Ladění parametrů a validace modelu

Regresní model pro predikci přírodního pozadí má podobu:

$$S = U\beta + \varepsilon$$

kde S představuje analyzované spektrum, U je matice plánu obsahující ve sloupcích SKP, β je vektor regresních koeficientů bez absolutního členu a ε je vektor reziduí (šumový člen). Odhad regresních koeficientů $\hat{\beta}$ je pak proveden obyčejnou metodou nejmenších čtverců.

Podoba matice U je přitom ovlivněna následujícími hyper-parametry modelu:

- počtem uvažovaných komponent k
- parametry blokové faktorizace (počet a poloha jednotlivých bloků)
- parametry algoritmů, které zajišťují kompenzaci posunu zesílení detektoru (referenční píky apod.)
- parametry algoritmu rSVD (oversampling p , řád iterace q)

Ladění těchto hyper-parametrů vzhledem k vybrané metrice popisující predikční schopnost modelu je pak prováděno s použitím validačního datasetu, který obsahuje data nepoužitá pro konstrukci U . Tím je redukováno riziko, že dojde k přeučení modelu (*overfitting*). Vzhledem k dobré reprezentativnosti původních dat, jejich rozsahu a tomu, že byla do trénovacího a validačního datasetu rozdělena náhodně, bylo upuštěno od vícenásobné validace (tzv. *křížová validace*) a byla provedena pouze jednoduchá (tzv. *holdout*) validace.

Jako metrika predikční schopnosti modelu na validačním datasetu byla zvolena standardní chyba odhadu (PRESS statistika – „*predicted residual error sum of squares*“) definovaná jako:

$$PRESS = \sum_{j=1}^{ns} \sum_{i=1}^{nk} (S_i^j - \hat{S}_i^j)^2$$

kde S_i^j je i -tý kanál j -tého analyzovaného spektra, \hat{S}_i^j je i -tý kanál j -tého modelem predikovaného spektra, nk označuje počet kanálů spektra a ns je počet spekter ve validačním datasetu.

Pro názornější porovnání kvality různých modelů byla zavedena rovněž relativní PRESS, kdy jsou hodnoty vztaženy k nejvyšší hodnotě nejhoršího modelu v %. Pro posouzení predikce konkrétních spekter byly použity i některé další metriky, jako je například adjustovaný koeficient determinace R^2_{adj} a Kullbackova–Leiblerova vzdálenost KL²³ definované jako

$$R^2_{adj} = 1 - \frac{(N - 1)}{(N - k - 1)} \sum_i^N \frac{(S_i - \hat{S}_i)^2}{(S_i - \underline{S})^2}$$

$$KL(S, \hat{S}) = \sum_i^N \text{Ln} \left(\frac{S_i}{\hat{S}_i} \right) S_i$$

kde S_i resp. \hat{S}_i je i -tý kanál původního, resp. predikovaného spektra a \underline{S} označuje střední hodnotu S , N označuje počet kanálů spektra a k je počet použitých SKP.

Samotné ladění parametrů modelu bylo prováděno na dvou úrovních

1. Celkové PRESS skóre na validačním datasetu
2. Chyba predikce u nejhůře fitovaných spekter ve validačním datasetu

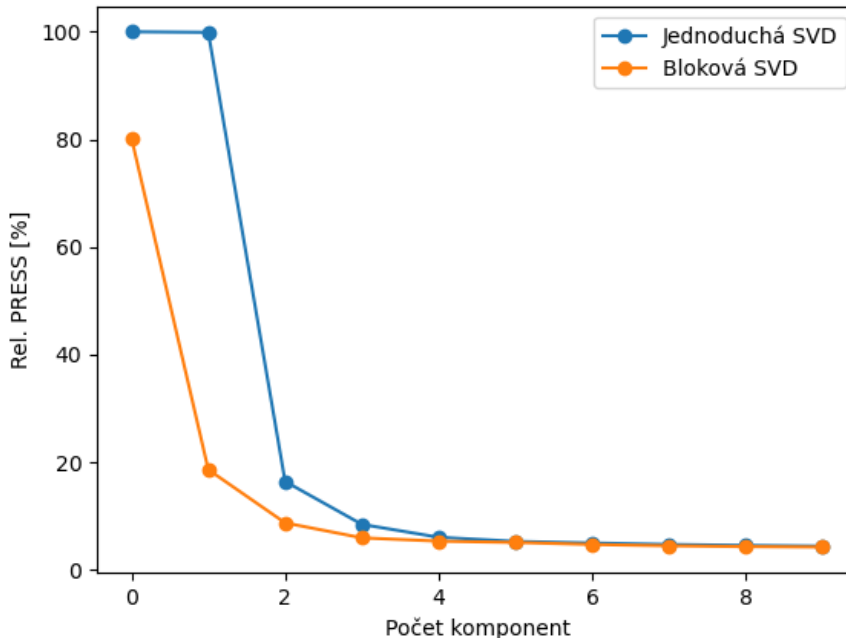
Hodnocení 1) dává informaci o celkové predikční schopnosti modelu a hodnocení 2) se pak zaměřuje na ta spektra, která nejsou modelem dobře popsána. Studium těchto případů pak může odhalit fyzikální příčiny. Ukazuje se například, že model může chybně predikovat některá spektra s nízkou četností impulsů nebo anomálním poměrem jednotlivých radionuklidů (například v důsledku vymytí DPR z atmosféry intenzivním deštěm apod.).

Do jisté míry se tento efekt podařilo eliminovat separátním odvozením komponent pro pozadí bez přítomnosti kontaminovaného filtru. Tyto komponenty byly přidány do matice modelu, což vedlo ke snížení chyby predikce pro některá řídká spektra. Na základě experimentů se ukazuje, že optimálně nastavená bloková varianta rSVD poskytuje lepší výsledky jak v rámci celkového PRESS, tak i ve schopnosti lépe popisovat anomální spektra.

²³ KL není v matematickém smyslu metrika (jedná se o divergenci), protože nespĺňuje požadavek symetrie, tj. $KL(S,S) \neq KL(S,S)$.

Jedním ze zásadních hyper-parametrů je počet uvažovaných SKP, jehož optimální nastavení lze provést na základě PRESS skóre, viz **Obrázek 2.4-4**.

Obrázek 2.4-4 Standardní chyba odhadu (relativní PRESS statistika) pro daný počet komponent modelu. Bloková SVD uvažuje 6 oddělených segmentů spektra.



Poznámka: predikční schopnost Blokové SVD roste v porovnání s prostou SVD rychleji (rel. PRESS klesá rychleji). Nicméně pro 10 komponent je rozdíl „jenom“ 5 %. I takto nízký rozdíl ale může znamenat velmi rozdílnou schopnost predikovat nestandardní spektra.

Kontrola kvality vstupních dat

Na kvalitu modelu má zásadní vliv i předúprava dat, tj. vyloučení porušených spekter a kompenzace posunu zesílení (tzv. *gain shift*), který je často způsoben teplotní závislostí elektroniky zpracovávající výstupní signál z detektoru. Tímto způsobem dochází k posunu spektra, tj. identické kanály nekompenzovaných spekter nenesou stejnou fyzikální informaci, a dochází k porušení korelační struktury datasetu, což v extrémních případech může vést až k úplnému kolapsu rSVD algoritmu.

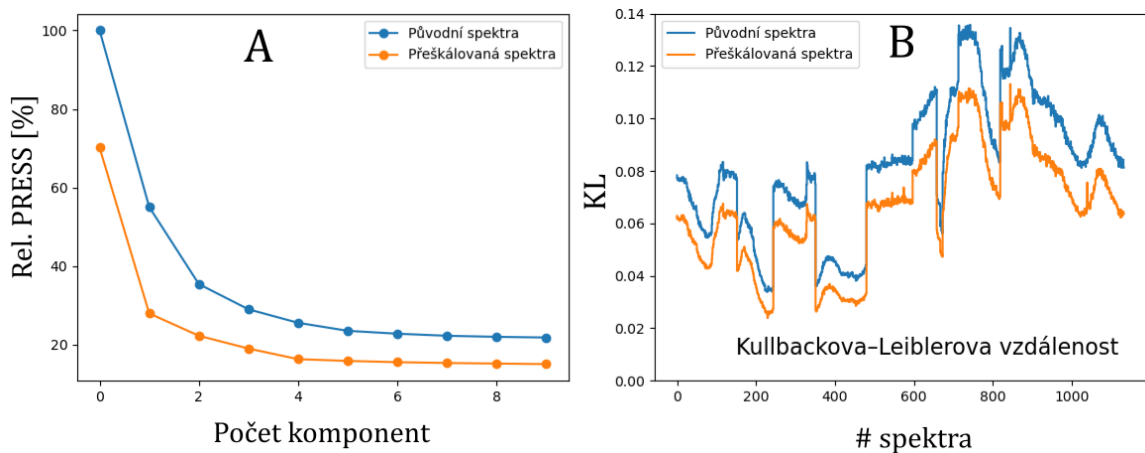
Většinou jsou posuny spektra mírné, nicméně i tak je vhodné je před další analýzou numericky přeškálovat na referenční energetickou kalibraci. Vliv zarovnání spekter na predikční sílu modelu ilustruje **Obrázek 2.4-5**.

Měřená spektra typicky obsahují velké množství píků odpovídajících radionuklidům přírodního pozadí, které lze využít jako referenční a získat tak s jejich pomocí

energetickou autokalibraci. Schematicky lze postup numerické kompenzace zesílení popsat následovně:

- 1) Stanovení koeficientů referenční energetické kalibrace β :
 $E_i[keV] = \beta_0 + \beta_1 CHNL_i$, kde $CHNL_i$ označuje i-tý kanál ve spektru
- 2) Stanovení koeficientů $\hat{\beta}$ energetické autokalibrace na základě nalezení poloh referenčních píků v měřeném spektru: $E_i[keV] = \hat{\beta}_0 + \hat{\beta}_1 CHNL_i$
- 3) Vytvoření přeškálovaného spektra S^{reb} jako $S_i^{reb} = \int_{E_i}^{E_{i+1}} S(\hat{E})d\hat{E}$, kde $S(\hat{E})$ je schodová interpolační funkce původního spektra na autokalibrované energetické škále.

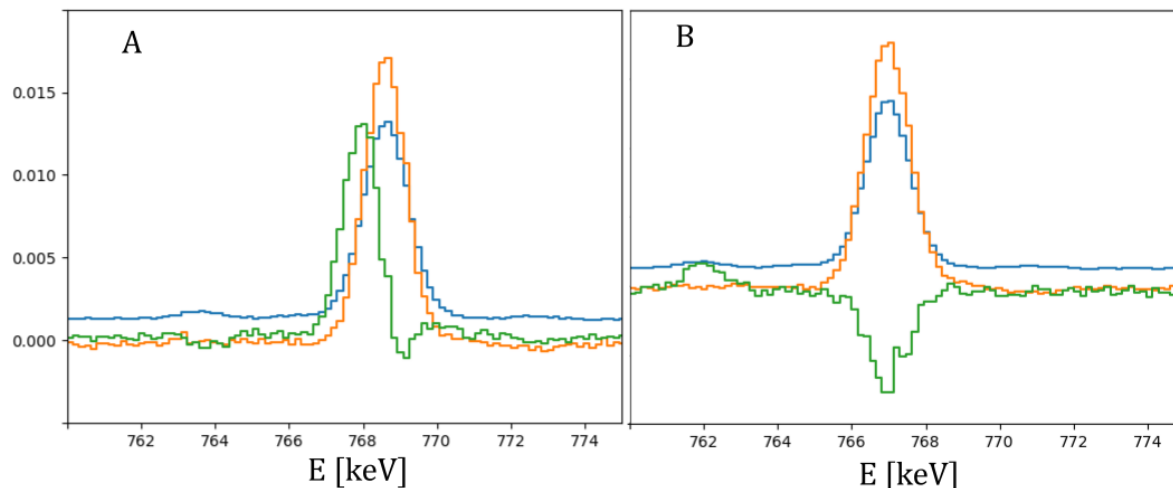
Obrázek 2.4-5 Vliv zarovnání dat na predikční schopnost modelu. A) Relativní PRESS statistika pro původní a pro zarovnaná data; B) K-L vzdálenost pro individuální spektra podmnožiny validačního datasetu.



Primárním důvodem snížené predikční schopnosti modelu pro nezarovnaná spektra je to, že výsledné singulární vektory „jsou nuceny“ popisovat nejenom variabilitu v četnosti impulsů, ale i v poloze daných píků a dalších spektrálních struktur. Tím se uměle zvyšuje dimenze celého problému a tím i požadavky na počet SKP. Tento efekt lze pozorovat přímo na jejich tvaru, viz **Obrázek 2.4-6**, kde jsou pro ilustraci

znázorněny první tři nejvýznamnější SKP pro zarovnaná a nezarovnaná data v oblasti píku na 767 keV.

Obrázek 2.4-6 První tři SKP odvozené blokovou SVD pro původní (A) a zarovnaná data (B) v oblasti 767 keV.



Alternativy k SVD

V rámci řešení problematiky a samotného testování při konstrukci detekčních algoritmů byly prozkoumány možnosti využití alternativních metod redukce dimenze, a to jak prostřednictvím dalších přístupů založených na faktorizaci matic, tak přístupů využívajících neuronové sítě.

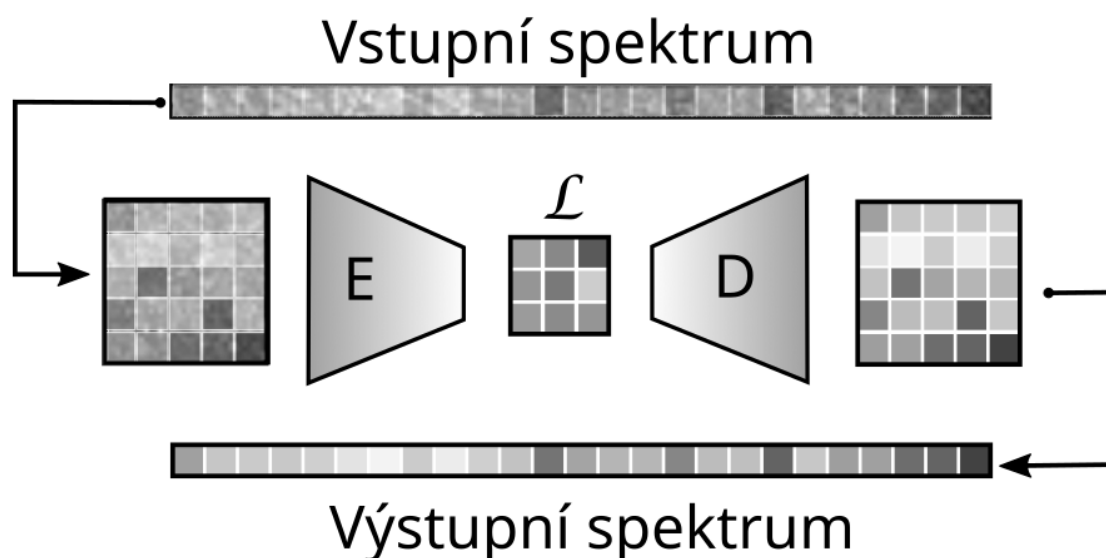
Kromě SVD byly zkoumány možnosti využití faktorizačních metod PLS (*partial least squares* (Rosipal & Krämer, 2006)) a NMF (*non-negative matrix factorization*, (Gillis, 2014)). Ukazuje se však, že tyto metody jsou jen obtížně aplikovatelné na problematiku online analýzy spekter s rozsáhlými datasety. Časová náročnost výpočtu výrazně komplikuje jejich praktické použití a jejich výsledky nedosahovaly kvality výstupu randomizované SVD metody. Nicméně obě metody jsou vhodným doplňkem k SVD pro průzkum korelačních struktur v trénovacím datasetu.

Predikční modely založené na neuronových sítích jsou populární metodou pro řešení tohoto typu úloh. Jako nejperspektivnější se jeví použití struktur založených na tzv. autoenkodérech (AE). Jedná se o typ neuronové sítě, která se snaží na výstupu reprodukovat co nejpřesněji vstupní data, jež postupně prochází zakódováním a dekódováním. Úspěšně natrénovaný AE pak popisuje data pomocí

nízkodimenzionální reprezentace v tzv. latentním prostoru, v němž jsou uloženy relevantní struktury vstupních dat, zatímco šumová složka je „zapomenuta“. Na pozadí tohoto přístupu tak stojí analogická myšlenka jako u PCR metody a pro jisté třídy AE se dá dokonce dokázat i jejich ekvivalence s PCR (**Baldi & Hornik, 1989**).

Pro online analýzu spekter byly zkoumány možnosti použití jak jednodimenzionálních AE, tak jejich 2D varianty, které se v oblasti strojového učení využívají ke zpracování obrazové informace. Pro použití 2D AE byla spektra po řádcích převedena do rastrové matice o rozměru 128 x 128 pixelů. Schematicky je postup znázorněn na **Obrázku 2.4-7**, kde proces kódování (E) a dekódování (D) obsahuje další vrstvy jako například *dekonvoluční vrstvu*, vrstvu pro *upscaling*, *maxpooling* apod. Více o konstrukci AE lze nalézt například v dokumentaci programové knihovny KERAS (**Chollet, 2015**). Konkrétní ukázka schopnosti predikční schopnosti AE je znázorněna na **Obrázku 2.4-8**.

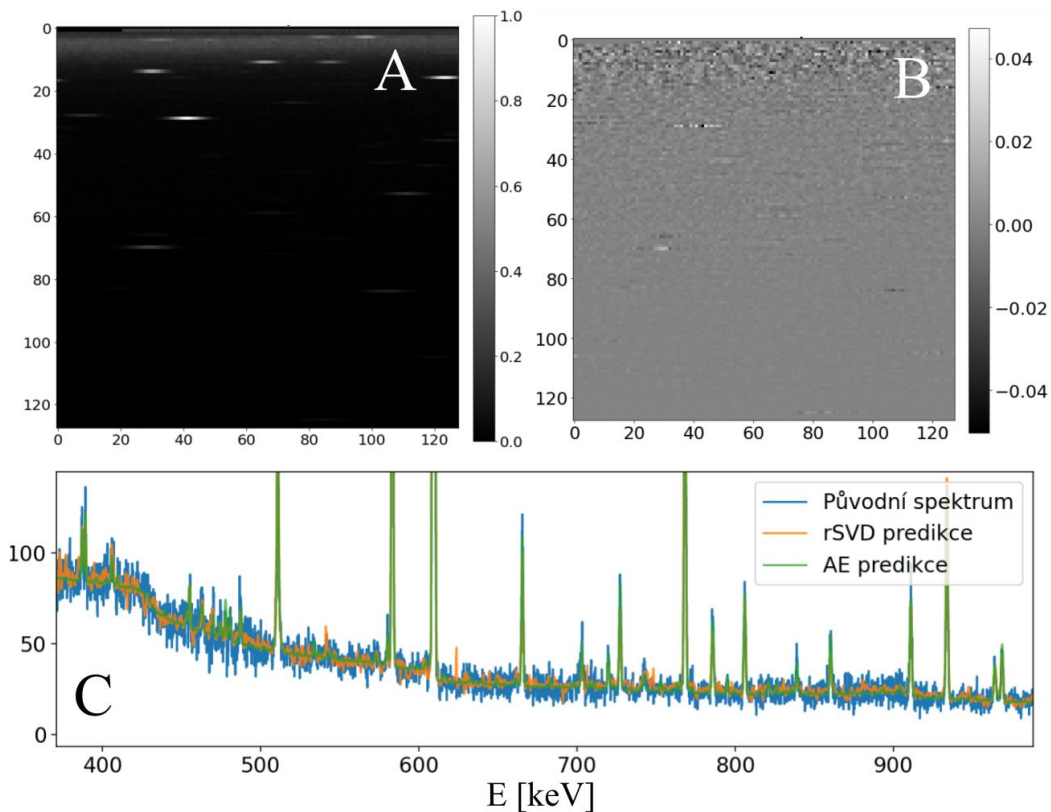
Obrázek 2.4-7 Schéma postupu analýzy spekter pomocí 2D AE. Vstupní spektrum převedené do 2D matice je pomocí nízko-dimenzionální reprezentace v latentním prostoru \mathcal{L} převedeno na výstupní spektrum zbavené šumu (princip tzv. denoising AE).



Přestože je řešení pomocí neuronových sítí zajímavou možností jak analyzovat online spektra, nebylo pro operační nasazení použito kvůli komplikovanější implementaci, výpočetní náročnosti a omezené možnosti fyzikální interpretace latentního prostoru. Nicméně jejich výhodou oproti PCR metodě je jejich potenciální schopnost modelovat i nelineární efekty pomocí vhodně zvolené aktivační funkce. To může být například

situace, kdy pozorujeme ve spektru rozšířené píky v důsledku zhoršení rozlišení detektoru apod. Tyto efekty lze ale v praxi eliminovat důkladnou kontrolou vstupních dat a vyloučením poškozeného spektra nebo jeho numerickou korekcí.

Obrázek 2.4-8 Ilustrace analýzy spektra prostřednictvím 2D AE. A – normalizované vstupní spektrum uspořádané do matice 128 x 128. B – reziduální spektrum po odečtu přírodního pozadí 2D AE. C – 1D reprezentace totožného spektra a predikce na základě rSVD a 2D AE.



Hodnocení spekter

Odečet přírodního pozadí pomocí rSVD přístupu je pouze prvním krokem na cestě k výsledku. V dalším kroku na něj navazuje analýza reziduálního spektra a výpočet různých statistik určených pro rozhodnutí, zda byla, či nebyla překročena alarmová úroveň. V praxi se osvědčily dva přístupy:

- 1) Fitování reziduálního spektra spektrálními komponentami uvažovaných umělých radionuklidů

2) Statistické testování přebytku impulsů v uvažované ROI reziduálního spektra

Přístup 1) vyžaduje, aby uživatel dodal spektrální komponenty (jednotlivá spektra) umělých radionuklidů, které si přeje hodnotit. Při získávání těchto komponent experimentální metodou je naprosto klíčové zajistit, aby spektra nebyla kontaminována přírodními radionuklidy. V opačném případě totiž snadno dojde v analýze reziduálního spektra k falešně pozitivní identifikaci. Proto se zde uplatňuje i metoda Monte Carlo simulace. Hodnocení reziduálního spektra je pak dáno sledováním statistické významnosti příslušných modelových koeficientů, které odpovídají umělým radionuklidům.

Hodnocení přístupem 2) je založeno na průzkumu uživatelem definovaných ROI (typicky v oblastech významných píků hledaných RN), ve kterých je hodnocen přebytek impulsů nad mez běžně pozorovaných fluktuací. Konkrétně byla zavedena statistika S definovaná jako:

$$S = \frac{ROI_{rez}}{\sqrt{|ROI_{pred}|}}$$

kde ROI_{rez} , resp. ROI_{pred} označuje součet impulsů v analyzované oblasti reziduálního, resp. predikovaného spektra. Alarmové úrovně byly typicky nastaveny jako jednostranný 99% toleranční interval pozad'ových hodnot (tj. reziduálních CPS pro nekontaminovaná spektra).

2.4.4. VALIDACE METODY

Pro účely validace modelu byla využita simulační metoda, při níž byla do čistých (nekontaminovaných) spekter přidávána virtuální aktivita umělých radionuklidů a poté byla sledována odezva algoritmu na tuto kontaminaci.

Jako zdrojový dataset umělých radionuklidů ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{131}I a ^{106}Ru byla použita experimentálně změřená spektra filtrů s přidanou aktivitou. V případě ^{106}Ru byla využita spektra a měření filtrů z roku 2017, kdy bylo ^{106}Ru detekováno v ovzduší. Přidávání aktivit do čistých spekter probíhalo opakovaně a náhodně tak, aby byla co nejlépe popsána variabilita odezvy pro různé pozad'ové podmínky měření.

Díky tomu, že byla do čistých pozadových spekter přidávána definovaná virtuální aktivita, bylo možné stanovit i detekční limity, které byly pro účely této práce definovány tak, aby pravděpodobnost falešně negativního i falešně pozitivního výsledku byla $<1\%$. Na **Obrázku 2.4-9** je uvedena ukázka validační simulace pro vybrané RN.

Dosažené detekční limity pro referenční umělé radionuklidy se pohybuje v rozmezí 60–70 Bq s výjimkou ^{106}Ru , pro které byl detekční limit stanoven na cca 420 Bq, což souvisí s nižším výtěžkem jeho energetických linek ve srovnání s ostatními RN.

Detekční limity jsou stanoveny konzervativně, kdy se při jejich odvození uvažovaly nejrůznější podmínky a druhy pozadových spekter. V ideálním případě, například v období začátku odběru a při nízké koncentraci atmosférického radonu, lze očekávat i řádové vyšší citlivost v porovnání s konzervativním odhadem.

Uvážíme-li, že průtok odběrovým zařízením aerosolu je $900\text{ m}^3/\text{hod}$, je systém VIRA schopen na úrovni hodin detekovat desítky mBq/m^3 ^{137}Cs (za předpokladu konstantní koncentrace v ovzduší). Po 8 hodinách odběru se dostáváme na úroveň jednotek mBq/m^3 .

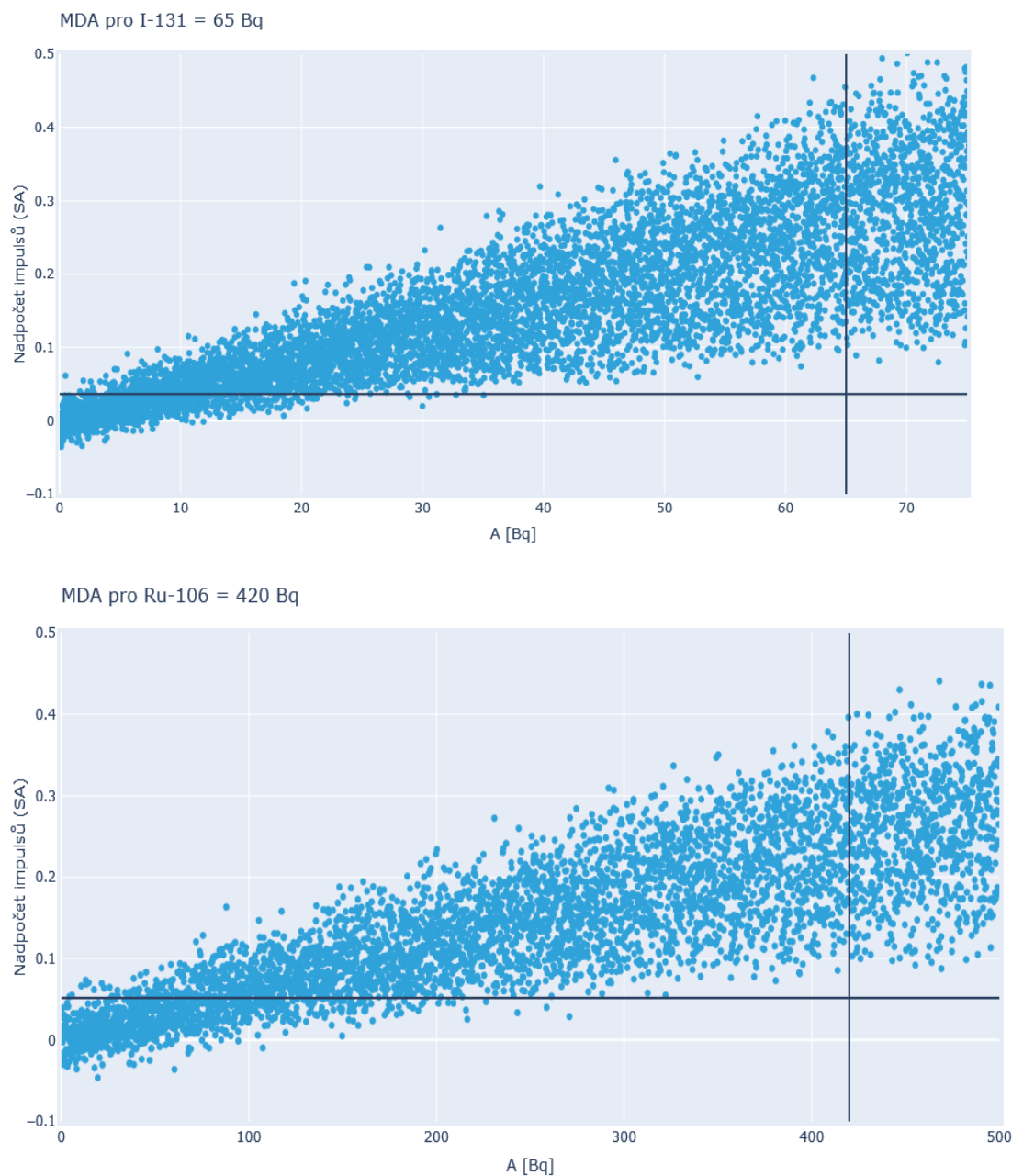
Validace algoritmu byla provedena nejenom na opakovaném náhodném vzorku, ale i na souvislých blocích chronologicky navazujících dat. Do těchto bloků pak byly postupně přidávány virtuální aktivity umělých radionuklidů tak, aby bylo možné pozorovat chování detekčního algoritmu na reálných scénářích – tedy v situacích, kdy se aktivita na filtr deponuje postupně.

Pro vizualizaci dat jsou v tomto případě využívány tzv. *waterfall* grafy, ve kterých jsou jednotlivá spektra řazena postupně za sebe do matice, jež je pak zobrazena s použitím barevného kódování na základě počtu impulsů v daném kanálu.

Tento přístup je vhodný zejména z důvodu proměnlivosti přírodního pozadí, v důsledku čehož čas od času dochází k falešně pozitivním detekcím. Je proto vhodné hodnotit situaci nikoliv pouze na základě informací z podezřelého spektra, ale v kontextu ostatních měřených dat. Příklady vizualizace uměle kontaminovaných spekter jsou uvedeny na **Obrázku 2.4-10** a **Obrázku 2.4-11**. I z tohoto důvodu je v softwaru VIRA implementován heuristický přístup pro zasílání alarmových hlášení založený na sledování plovoucího součtu převýšení alarmové úrovně v nastavených

ROI v N posledních spektrech. Alarm tedy není iniciován při jakémkoliv (třeba náhodném) převýšení úrovně, ale až v okamžiku, kdy dojde k převýšení i v dalších časově blízkých spektrech.

Obrázek 2.4-9 Ukázka odezvy rSVD algoritmu na uměle přidávanou aktivitu ^{131}I a ^{106}Ru se znázorněním dosažených detekčních limitů (vertikální linka označuje polohu MDA). Horizontální linie označuje 99% toleranční interval fluktuace šumu (odezva algoritmu na nekontaminovaná spektra).



Pro účely identifikace anomálního signálu je výhodné zobrazovat ve formě waterfall grafu reziduální spektra (po rSVD odečtu pozadí) namísto původních. Toto zobrazení zvýší kontrast umělých složek spektra a potlačí přírodní složky.

Při hodnocení prostřednictvím waterfall grafu je nutné mít na paměti, že odečet přírodního pozadí není nikdy proveden optimálně a v reziduálním spektru se tak dále mohou vyskytovat struktury jevící se na první pohled jako umělý signál. Podrobnější analýzou lze ale tyto artefakty poměrně spolehlivě odhalit – většinou se jedná o oblasti píků přírodního pozadí, které buď nebyly uspokojivě odečteny z důvodu omezené predikční schopnosti modelu, anebo z důvodu nedokonalé kompenzace zesílení spektrometru.

Událost z roku 2017 byla využita pro další validační simulace. V té době byl v čerstvém zkušebním provozu první prototyp online systému s HPGe detektorem a bylo tak možné zachytit časový průběh kontaminace atmosféry. Získaná depoziční křivka aktivity na aerosolový filtr pak byla použita pro simulaci identického scénáře v dalších časových obdobích. Bylo tak možné posoudit vliv aktuálního pozadí na citlivost detekce. Analyzovat přímo původní spektra pomocí finálního modelu nebylo možné, protože mezitím došlo ke změně hardware a tím i geometrie měření.

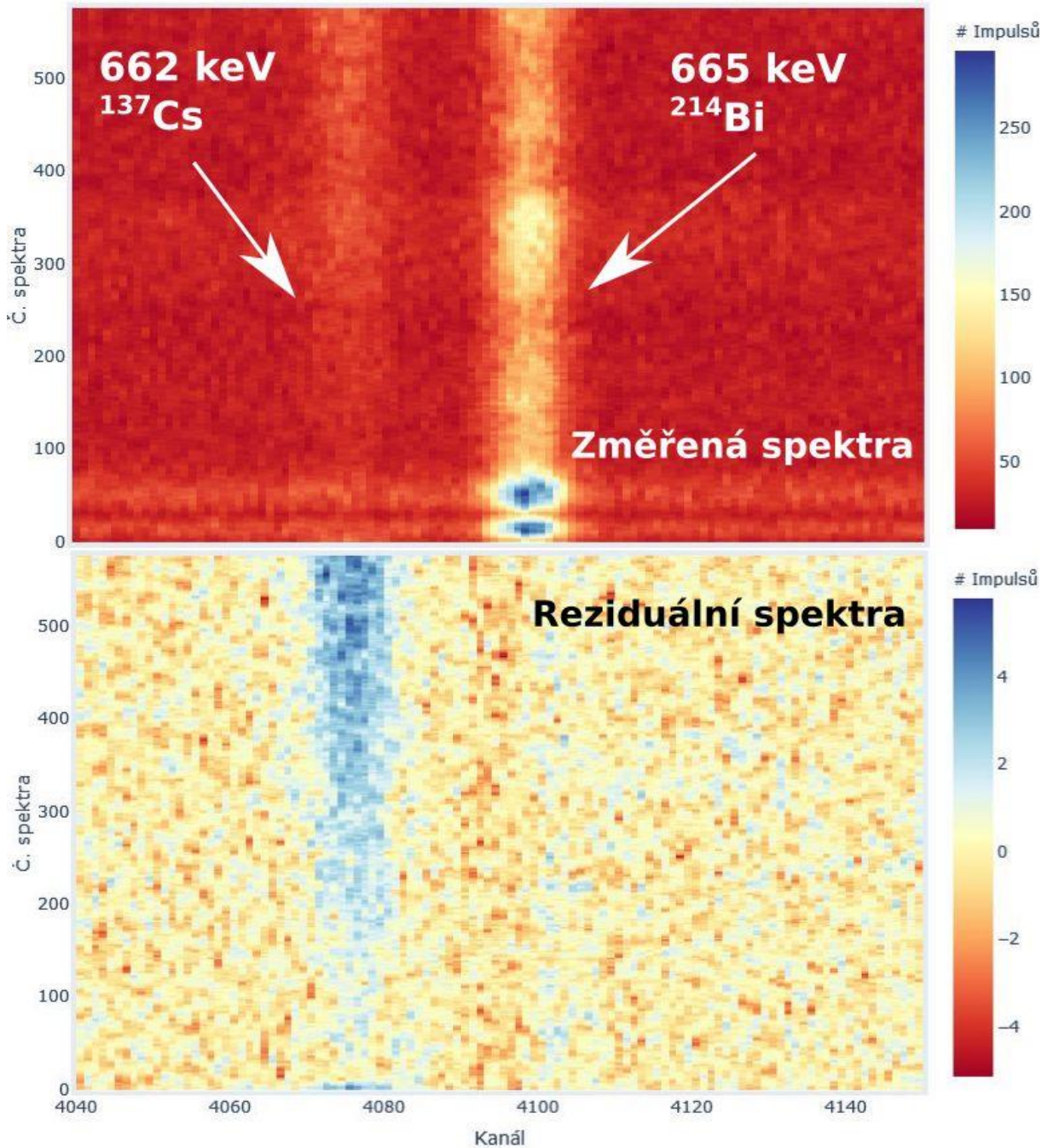
Simulace s ^{106}Ru je zajímavá i ze spektrometrického hlediska, protože jsou na algoritmus VIRA kladeny vysoké nároky v podobě poměrně slabé linky 622 keV a linky 511.85 keV, která silně interferuje s anihilačním píkem na 511 keV. Zejména u takových scénářů vyniká rSVD přístup nad standardními metodami hodnocení spekter, kde interferující linky nelze efektivně pro analýzu využít – viz názorné srovnání na **Obrázku 2.4-12**.

Na základě provedených simulací bylo zjištěno, že detekce ^{106}Ru prostřednictvím SVD přístupu je cca 3–5x citlivější, což znamená dřívější detekci o 15–20 hodin ve srovnání se standardním přístupem. Tato skutečnost je ilustrována i na **Obrázku 2.4-13**, kde je zobrazeno spektrum odpovídající pozitivní detekci programem VIRA, u něhož je obtížné si představit, že by takto drobné změny ve spektru byly zachyceny píkovou analýzou nebo i okem zkušeného analytika.

Na závěr byla provedena analýza toho, jak přesně lze z reziduálních CPS zpětně určit průběh depozice aktivity na aerosolový filtr. Nejistota rekonstrukce depoziční křivky je dána variací pozadových podmínek v jednotlivých simulacích. Pro scénář „ ^{106}Ru 2017“ byly pozorovány odchylky od referenčních hodnot do cca 25 %, což lze považovat za uspokojivý výsledek, i vzhledem k tomu, že primárním cílem je zde

detekce, nikoliv kvantifikace aktivity. Ukázka rekonstrukce depoziční křivky je pro 3 hypotetická období znázorněna na **Obrázku 2.4-10**.

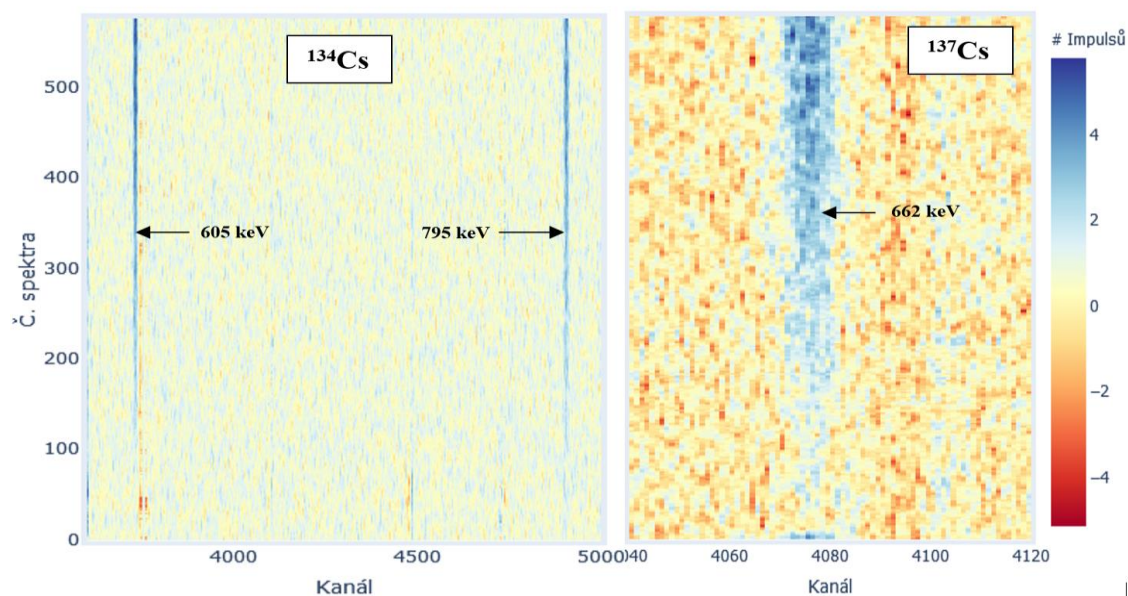
Obrázek 2.4-10 Grafický výstup SVD analýzy: waterfall znázornění původních a reziduálních spekter s přidanou aktivitou ^{137}Cs .



Poznámka: horizontální osa představuje energetickou škálu vyjádřenou v kanálech spektra, vertikální osa představuje časovou škálu vyjádřenou pořadovým číslem spektra; časový interval mezi jednotlivými spektry je 10 min. V původních spektrech dominuje pik 665 keV

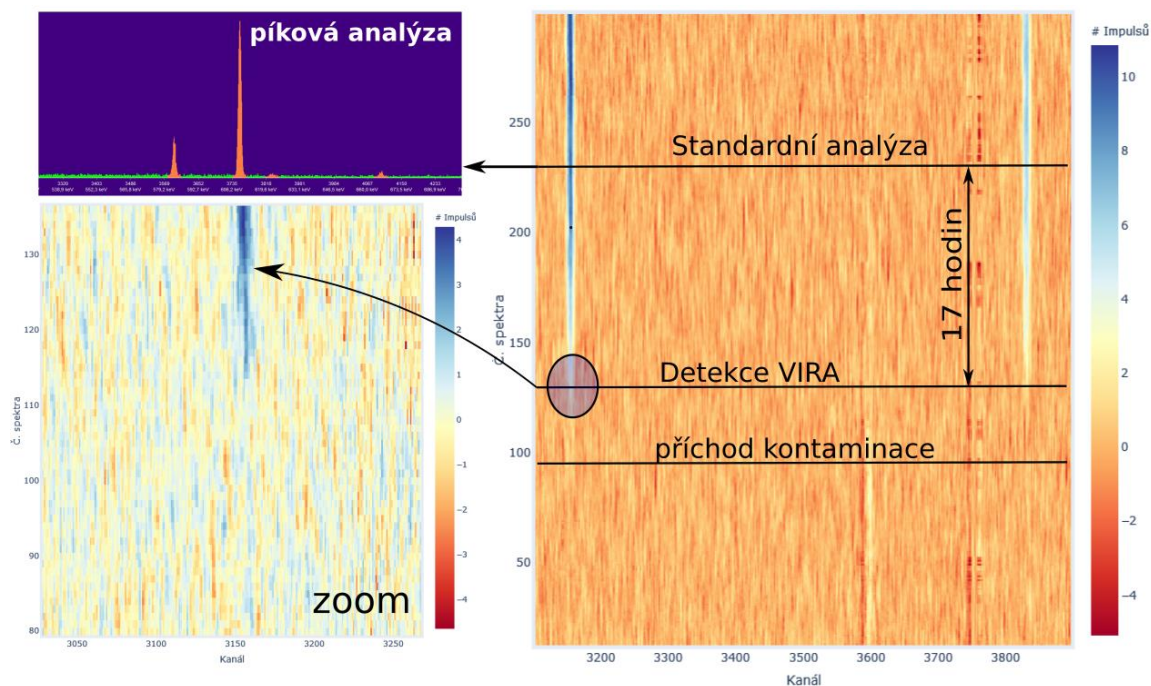
náležící přírodnímu ^{214}Bi , který je na reziduálním grafu potlačen a vyniká tak hledaný signál odpovídající $662\text{ keV }^{137}\text{Cs}$.

Obrázek 2.4-11: Vizualizace odezvy detekčního algoritmu na chronologicky navazující dataset postupně kontaminovaných spekter, příklad kontaminace ^{134}Cs a ^{137}Cs . Znázorněno je reziduální spektrum. Modrá barva indikuje oblast zvýšeného počtu impulsů.



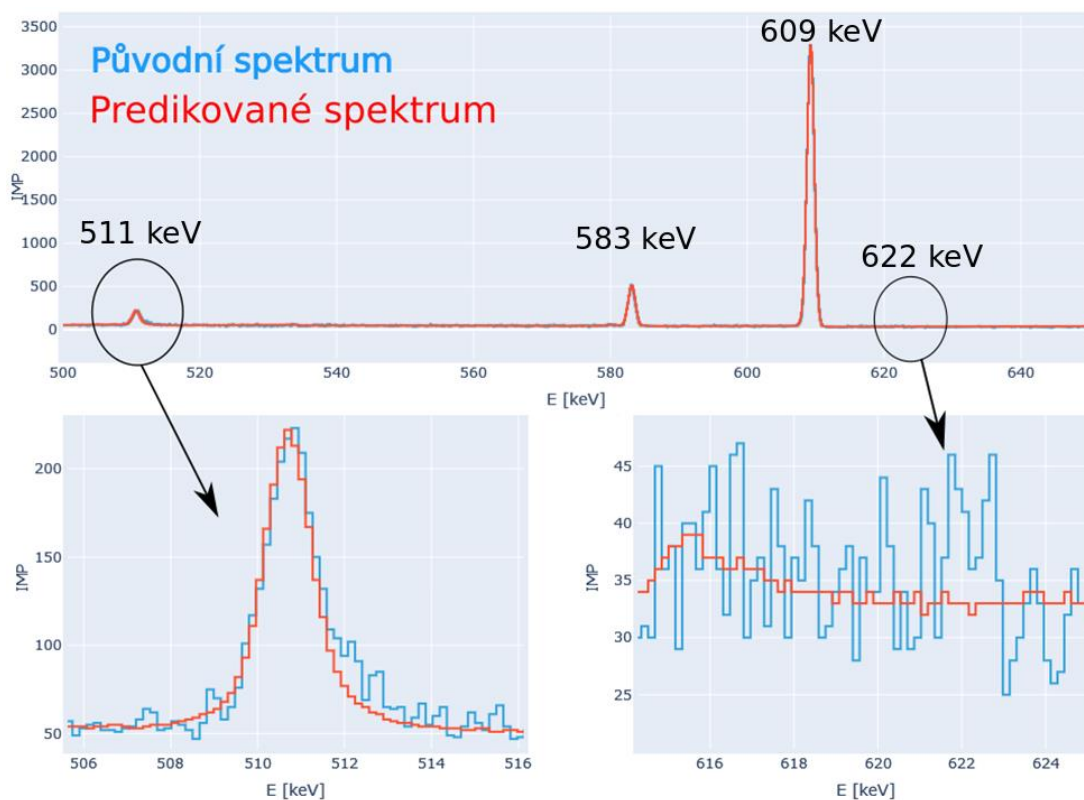
Poznámka: Na horizontální ose je vynesena energetická škála vyjádřená číslem kanálu spektra, na vertikální ose je vynesena časová škála vyjádřená pořadovým číslem spektra (perioda měření spekter je 10 min, tj. celkově je zobrazeno období 100 hodin). Analyzovaný dataset obsahoval 600 spekter, do kterých byly postupně přidávány virtuální aktivity ^{134}Cs a ^{137}Cs s krokem $0,1\text{ Bq}$ – to znamená, že v tomto scénáři aktivita na filtru postupně lineárně rostla (to odpovídá situaci, kdy by v ovzduší bylo konstantních $0,7\text{ mBq/m}^3$ ^{137}Cs a ^{134}Cs) až do hodnoty 60 Bq , což zhruba odpovídá detekčním limitům pro oba tyto radionuklidy. Je zde ale vidět, že pozitivní detekci lze čistě vizuálně spolehlivě zaznamenat již zhruba ve čtvrtině odběrového intervalu, což souvisí s již zmíněným konzervativním přístupem pro stanovení detekčních limitů. Aktivitu $0,7\text{ mBq/m}^3$ ^{137}Cs a ^{134}Cs by tak systém zaznamenal po cca 1 dni odběru.

Obrázek 2.4-12 Srovnání citlivosti SVD a standardního přístupu pro scénář „ ^{106}Ru 2017“.



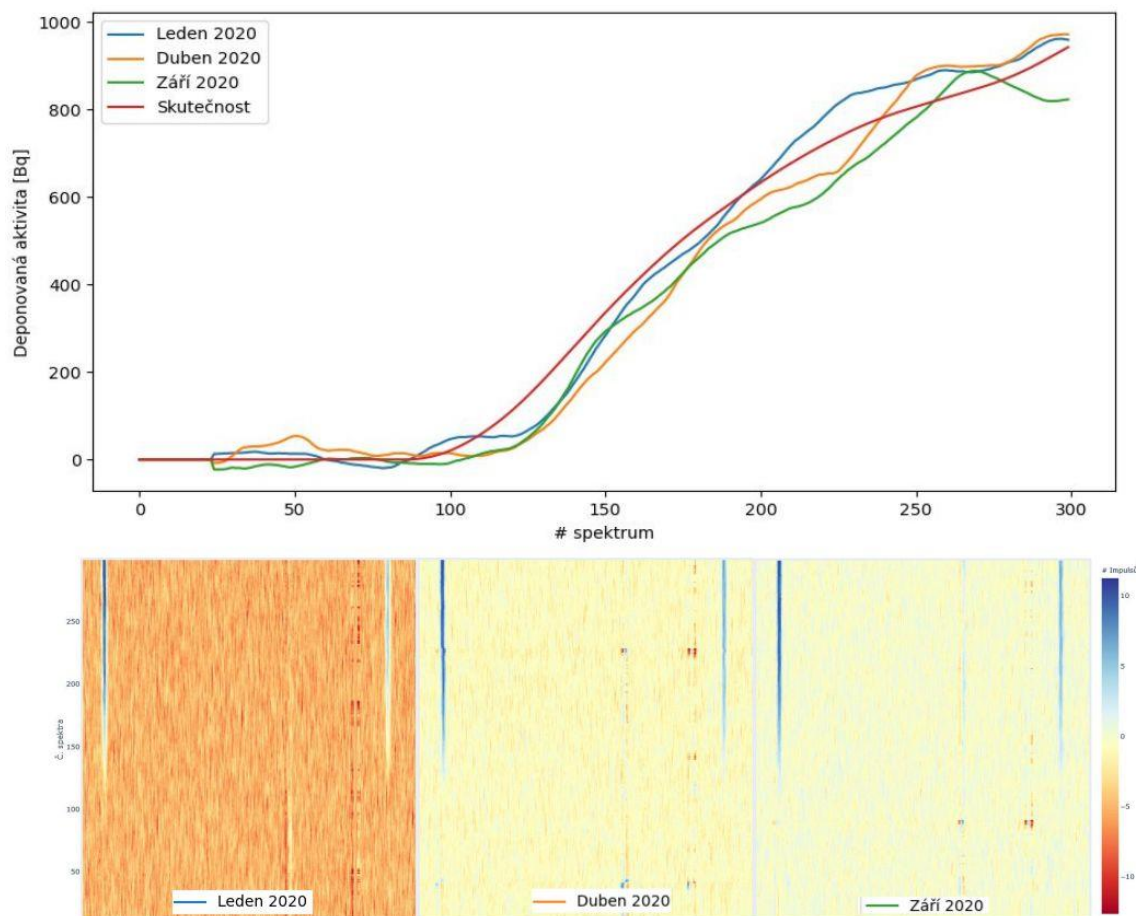
Poznámka: Horizontální linky v pravém panelu indikují okamžik příchodu kontaminace, okamžik detekce programem VIRA a okamžik detekce standardní metodou. Vlevo dole je zobrazena zvětšená oblast v ROI 511 keV v okamžiku detekce VIRA. Vlevo nahoře je znázorněn výsledek detekce standardní píkové analýzy implementované v softwaru Gamwin, která identifikovala simulovanou aktivitu ^{106}Ru přibližně o 17 hodin později.

Obrázek 2.4-13 Ukázka spektra s přidanou kontaminací ^{106}Ru na úrovni detekčního limitu online měření, zobrazeno je spektrum odpovídající integrační době 3600 s.



Poznámka: metoda odečtu pozadí pomocí rSVD využívá kombinované informace z ROI 622 keV i z oblasti anihilačního píku, který je v tomto případě multipletem složeným z příspěvků ^{208}Tl (510,74 keV), samotného anihilačního píku (511 keV) a píku odpovídajícího ^{106}Ru (511,85 keV). Standardní piková analýza zde dává falešně negativní výsledek, nicméně rSVD algoritmus detekuje statisticky významné zvýšení četnosti impulsů nad predikovanou úroveň.

Obrázek 2.4-14: Rekonstrukce depoziční křivky pro scénář „¹⁰⁶Ru 2017“ aplikovaný na tři různá časová období v roce 2020.



Poznámka: zobrazené depoziční křivky odpovídají vertikálnímu řezu waterfall grafu v zájmové ROI. Křivky byly vyhlazeny plovoucím průměrem s oknem o rozměru 25 spekter. Pozorovaná odchylka rekonstruovaného příkonu deponované aktivity od skutečného je přibližně 25 %.

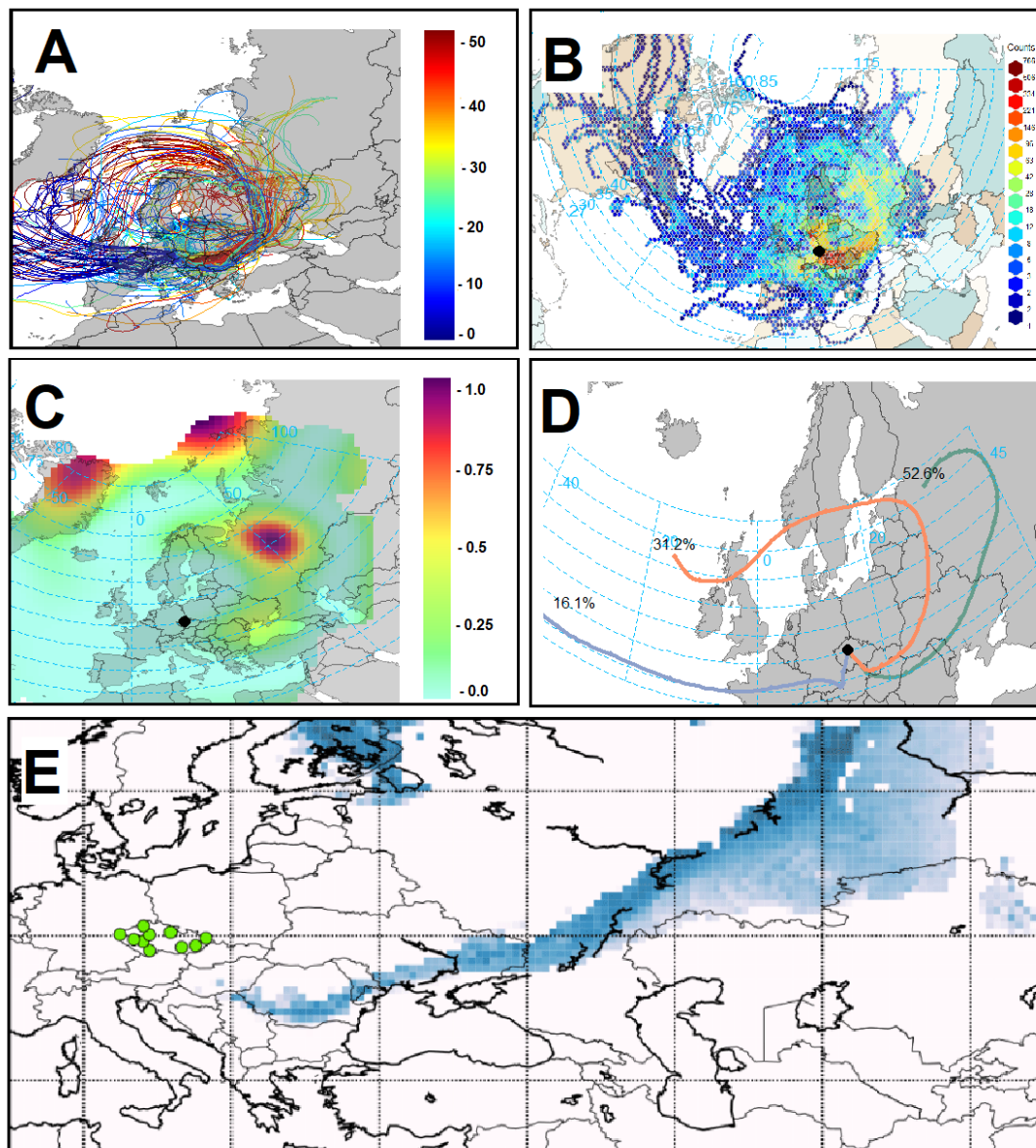
2.4.5. PROPOJENÍ ONLINE SPEKTER S METEOROLOGICKÝMI DATY

Cílem projektu byla nejenom citlivá detekce radioaktivní kontaminace, ale i rychlý odhad lokace jejího zdroje. Paralelně s analýzou spektra proto probíhá v softwaru VIRA výpočet zpětných trajektorií pomocí atmosférického modelu Hysplit (**Stein, Draxler, Rolph, Stunder, Cohen, & Ngan, 2015**), který využívá meteorologická data NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration, USA*). Obsahuje však i konverzní utility, pomocí kterých lze do modelu konvertovat i meteorologická data v jiných formátech, například ECMWF (*European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, EU*).

Použití inverzního modelování je ilustrováno na případu ^{106}Ru z roku 2017 na **Obrázku 2.4-15**. Prostřednictvím modelu Hysplit byly generovány jak zpětné trajektorie (řádově stovky v období přibližně 2 týdnů), tak SRS matice prostřednictvím disperzního modelování. Statistická analýza trajektorií již v prvních dnech po první detekci poskytla hrubou informaci o východní lokaci pravděpodobného zdroje. Na základě kompletního MRS datasetu pak byl proveden bayesovský odhad, který je konzistentní s analýzou RO5, kde byl za nejpravděpodobnější zdroj označen závod Majak v Čeljabinské oblasti Ruské federace. Až překvapivě dobrý odhad lokace na základě trajektoriové analýzy byl možný hlavně díky použití online monitorování.

Standardním výstupem VIRA jsou trajektorie generované za zvolené monitorovací období a zobrazené na mapovém podkladu. Ty jsou typicky generovány pro každé analyzované spektrum a ukládány do výstupního JSON souboru, který obsahuje jak výstupy spektrometrické analýzy, tak výstupy atmosférického modelování, a to i spolu se všemi relevantními metadaty. Podrobněji se tomuto formátu věnuje **Kapitola 2.4.6** spolu s obecným popisem architektury vyvinutého software.

Obrázek 2.4-15 Případová studie použití inverzního modelování na lokaci zdroje radioaktivní kontaminace ^{106}Ru v roce 2017. Trajektoriové statistiky byly vypočteny pouze na základě online monitorovacích dat v SÚRO Praha. Pro bayesovskou disperzní lokaci zdroje (obrázek E) byla použita kompletní data MRS.



Vysvětlivky: **A** – Zpětné trajektorie do monitorovacího místa SÚRO Praha během odběrového intervalu odpovídající první detekci ^{106}Ru (26. 9.–3. 10. 2017). Trajektorie jsou barevně odlišeny podle asociované aktivity (mBq/m^3). **B** – Frekvenční distribuce trajektorií na hexagonální geografické mřížce. Červenou částí spektra jsou znázorněny dlaždice mapy, kterými častěji procházely trajektorie asociované s vyššími aktivitami ^{106}Ru . **C** – PSCF statistika. **D** – Určení dominantních směrů šíření kontaminace prostřednictvím shlukové analýzy (algoritmus K-means). **E** – Bayesovský odhad lokace zdroje metodou LS-APC na základě kompletních MRS dat. Tmavší odstíny modré odpovídají vyšším relativním pravděpodobnostem lokace zdroje v daném místě.

2.4.6. SOFTWAREOVÁ IMPLEMENTACE

Analýza online spekter a inverzní atmosférické modelování byly implementovány v softwaru VIRA, jež obsahuje programovou knihovnu v jazyce Python, která s využitím dalších externích knihoven (*Scikit-learn*, *Keras*, *Numpy* aj.) zajišťuje multiprocesorovou variantu rSVD blokového algoritmu. Zároveň obsahuje funkce, které zprostředkovávají komunikaci s modelem Hysplit a zpracovávají jeho výstupy.

Konečným výstupem programu je RTD (*real-time data format*) soubor obsahující jak spektrometrické, tak atmosférické informace, na základě kterého lze celý proces analýzy reprodukovat a rovněž vizualizovat obsažená data. Zamýšlené použití softwaru je cíleno na podporu expertních týmů hodnotících radioaktivitu v ovzduší v rámci sítě monitorování radiační situace (MRS).

Struktura programu

Program VIRA má modulární strukturu, v níž jednotlivé moduly pracují asynchronně (viz přehledové schéma na **Obrázku 2.4-16**). Vstupem do programu jsou konfigurační soubory, které řídí způsob analýzy a formu výstupu, meteorologická data, na základě kterých jsou vypočítávány zpětné trajektorie modelem HYSPLIT, a spektra produkovaná online systémem.

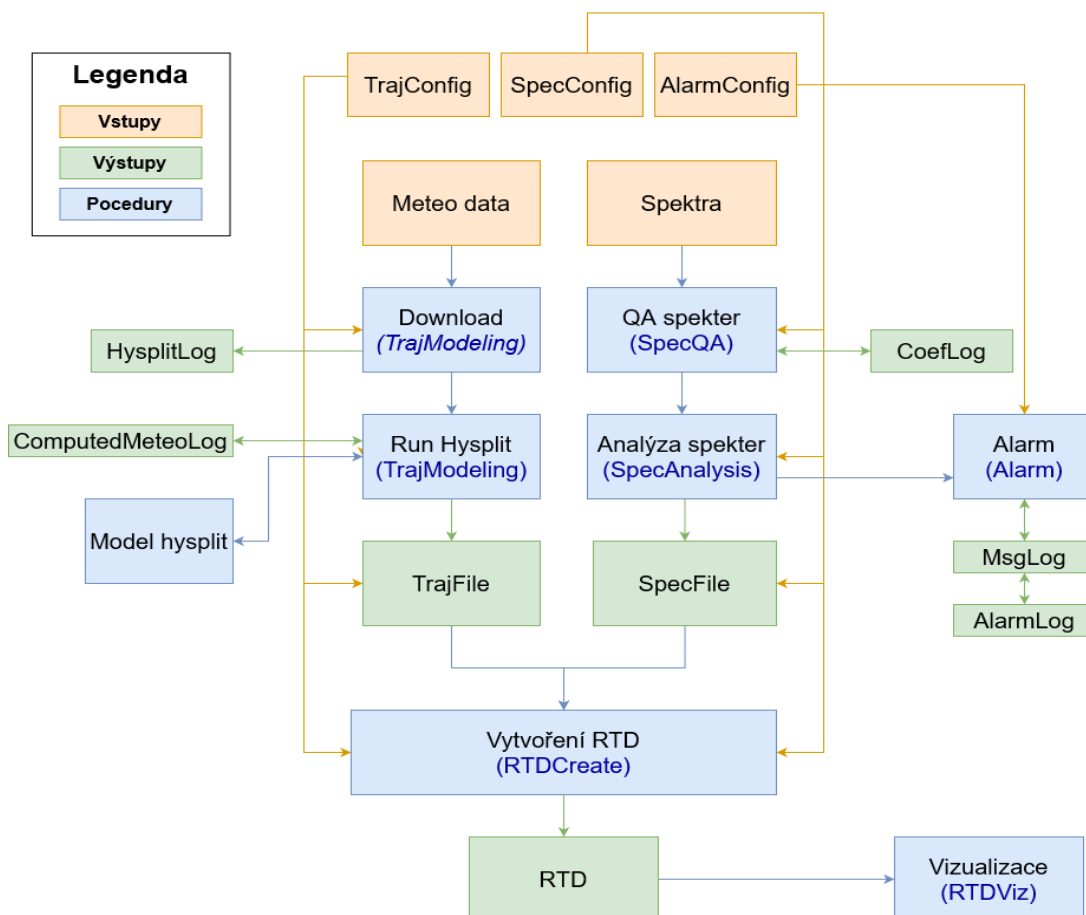
Výstupem softwaru jsou logovací soubory zachycující stav programu, analyzovaná spektra, zpětné trajektorie a finální datové soubory. Cílem bylo vytvořit člověkem čitelný soubor, který však lze snadno číst i strojově a který je zároveň dostatečně flexibilní pro uživatelské úpravy.

Parametry zapisované do výstupního souboru je možné rozdělit do čtyř skupin:

1. Metaparametry obsahující relevantní informace, které ale nejsou bezprostředně využity pro analýzu
2. Hardwarové parametry popisující typ zařízení (detektor a spektrometrickou trasu) a jeho nastavení
3. Spektrometrické parametry pro analýzu spekter a její výstupy
4. Parametry atmosférického modelu upravující jeho běh, zapisovány jsou pouze parametry podstatné pro reprodukovatelnost výstupu.

Flexibilita RTD souboru založeného na JSON formátu dovoluje libovolně přidávat další záznamy, nicméně pro ilustraci je v **Tabulce 1** uveden jejich minimální seznam.

Obrázek 2.4-16 Modulární struktura programu VIRA



Vysvětlivky: Konfigurační soubory TrajConfig, SpecConfig a AlarmConfig obsahují parametry, které upravují nastavení atmosférického modelu, analýzy spekter a nastavení alarmového hlášení. Modul Download zajišťuje automatické stahování dat z nastaveného FTP serveru podle uživatelem nastaveného schématu. V modulu SpecQA je provedena kontrola vstupních spekter, numerická kompenzace posunu zesílení apod. Modul TrajModeling zajišťuje propojení s modelem Hysplit a výpočet zpětných trajektorií. SpecAnalysis – analýza online spekter prostřednictvím rSVD algoritmu. Kontrola překročení nastavených alarmových úrovní a zaslání hlášení (SMS, email) je zajištěna funkcemi v modulu Alarm. RTD označuje výstupní soubor obsahující kompletní data pro další vizualizaci anebo reprodukci provedené analýzy.

Tabulka 1 Parametry zapisované do kombinovaného RTD souboru

	Parametr	Popis
META	Site	Označení monitorovacího místa
	SpecStartUTC	Datum a čas začátku nabírání spektra v UTC
	LiveTime	Živá doba měření
	RealTime	Skutečná doba měření
	TemperatureCelsius	Teplota venkovního vzduchu v °C
	RelativeHumidity	Relativní vlhkost venkovního vzduchu
HW	Sampler	Označení odběrového zařízení
	FlowRate	Průtok vzduchu odběrovým zařízením
	Det	Označení a typ HPGe detektoru
	MCA	Označení a typ multikanálového analyzátoru
	Nchannel	Počet kanálů MCA
	RiseTime	Rise time DSP
	FlatTop	Flat top parametr DSP
	GainCoarse	Hrubé zesílení zesilovače
	GainFine	Jemné zesílení zesilovače
SPEC	ALARM	Status alarmového hlášení
	ROI_stats	Statistiky odvozené z reziduálního spektra
	SpecRaw	Původní spektrum
	SpecFit	Fitované spektrum
	Ncomp	Počet komponent
	RegressionBlocks	Definice regresních bloků
	BackgroundMatrixFile	Název souboru s komponentami pozadí
	AtmosphericModel	Označení a typ atmosférického modelu
	MeteoData	Označení a typ meteorologických dat
ATM	TrajLen	Délka zpětné trajektorie
	TrajLat	Vektor zeměpisných šířek vypočítané zpětné trajektorie
	TrajLon	Vektor zeměpisných délek vypočítané zpětné trajektorie
	TrajHeigh	Vektor výšky vypočítané zpětné trajektorie
	StartLat	Zeměpisná šířka odběrového místa
	StartLon	Zeměpisná délka odběrového místa
	StartAlt	Nadmořská výška odběrového místa
	ATMParams ¹⁾	Nastavení parametrů atmosférického modelu

¹⁾ Pro model Hysplit se jedná například o parametry obsažené v souboru TRAJ.CFG, na základě kterého byl proveden výpočet trajektorií transportu aerosolu do místa měření.

3. ZÁVĚR

Obsah: Závěrem jsou shrnuty dosažené cíle s uvedením podílu autora na jednotlivých výsledcích. Nastíněny jsou předpokládané směry navazujícího výzkumu a vývoje.

Otázka kompromisu mezi citlivostí a včasností detekce radioaktivní kontaminace v ovzduší z úvodu této práce byla částečně zodpovězena rychlými metodami analýzy online spekter HPGe detektoru. Jejich užitím byla odstraněna slepá skvrna v podobě absence jakékoliv informace o úrovni kontaminace během vícedenních odběrů vzorků aerosolu.

Vyvinuté metody byly implementovány do softwaru, který odstraňuje úzké hrdlo procesu analýzy, jimž je vysoký podíl lidské práce. Analytik se tak může soustředit pouze na agregované výstupy analýzy a jejich interpretaci.

Hodnocení online spekter založené na jejich globální analýze se ukazuje jako mnohem silnější a robustnější nástroj, než je standardní lokální píková analýza. Aplikované metody maximálně využívají korelační strukturu spekter, ať už prostřednictvím metod založených na aproximaci matic, nebo na neuronových sítích. To vede k vyšší citlivosti analýzy a včasnější detekci, která tak může být potvrzena i o desítky hodin dříve (viz reálný scénář ^{106}Ru v roce 2017).

Z lepšího časového rozlišení monitorovacích dat mohou mít prospěch i navazující metody inverzního modelování, a to zejména v situacích, kdy je zjištěna kontaminace neznámého původu a je potřeba lokalizovat její zdroj. Pro určení místa jejího úniku bezprostředně po detekci jsou vzhledem k proměnlivosti meteorologické situace online data významným přínosem. Uplatnění výsledků standardního monitorování je pak otázkou spíše pozdějších fází, kdy jsou k dispozici údaje z více lokalit, čímž lze vliv horšího časového rozlišení do jisté míry redukovat.

Shrnutí dosažených výsledků

Hlavním výstupem této práce je prototyp online monitorovacího systému a software pro automatizovanou analýzu jím produkovaných spekter. Od roku 2022 je nejnovější verze online systému VIRA zapojena do běžného programu monitorování v lokalitě SÚRO Praha, kde probíhá i následná standardní analýza aerosolových vzorků. Tato kombinace přístupů pak poskytuje okamžitou informaci o radioaktivitě v ovzduší,

kteřá se postupně zpřesňuje od úrovně mBq/m^3 (online režim) až po desítky nBq/m^3 (laboratorní měření).

Autorský podíl: hlavní autor designu zařízení, metod hodnocení spekter a softwaru

Vedlejší výstupy jsou navázány na výzkum v oblasti semikontinuálních monitorovacích systémů a systémů určených ke kontinuálnímu monitorování vodních toků. Monitorovací data byla dále použita ve společných analýzách laboratoř RO5 týkajících se detekcí zvýšených koncentrací umělých radionuklidů v ovzduší. Stručný přehled těchto výsledků podává následující seznam:

- 1) Metodologie analýz spekter produkovaných semikontinuálním automatickým kolektorem HAMRAD. Podrobnější informace jsou uvedeny v práci (**Hýža et al., 2019**), která je zároveň uvedena v **příloze C** této práce.

Autorský podíl: spoluautor designu zařízení, hlavní autor metodologie analýzy spekter a predikčního modelu MDA v závislosti na OAR.

- 2) Analýza případu ^{106}Ru v roce 2017 – online monitorovací data poskytla výrazně přesnější časové rozlišení, na základě kterého bylo možné stanovit příchod kontaminace do monitorovacího místa Praha s přesností na několik hodin. Získaná data byla zahrnuta ve společné analýze laboratoř RO5 (**Masson et al., 2019**). Zároveň byla prezentována i samostatně v kontextu jejich kombinace s bayesovským přístupem k lokaci zdroje, viz publikace (**Tichý et al., 2021**), která je zároveň uvedena v **příloze B** této práce.

Autorský podíl: měření a interpretace dat z ČR, online metodologie, podíl na interpretaci celkových výsledků.

- 3) Společná analýza RO5 laboratoř týkající se resuspenze černobylské kontaminace v důsledku rozsáhlých požárů v roce 2020, viz diskuze v **kapitole 1.3.1** a publikace (**Masson et al., 2021**).

Autorský podíl: měření a interpretace dat z ČR, analýza příspěvku lokální resuspenze k pozorovaným datům, podíl na interpretaci celkových výsledků.

- 4) Společná analýza RO5 laboratoř zabývající se zvýšenými koncentracemi ^{131}I v ovzduší Evropy a pokus o kvantifikaci příspěvku jeho možných zdrojů, podrobně viz práce (**Masson et al., 2018**).

Autorský podíl: měření a interpretace dat z ČR, analýza vlivu lokálních zdrojů v ČR.

- 5) Stanovení charakteristické velikostní distribuce aerosolu asociovaného s ^7Be , ^{210}Pb a ^{137}Cs v různých lokalitách ČR, viz shrnutí v kapitole 1.3. *Autorský podíl: hlavní řešitel interního výzkumného úkolu SÚRO, analýza a interpretace dat, vývoj simulačních metod pro odhad parametrů log-normálního rozdělení velikostní distribuce*
- 6) Aplikace online metod založených na rSVD přístupu k hodnocení spekter z kontinuálního monitorování vodních toků (Fejgl & Hýža, 2019). *Autorský podíl: spoluautor designu zařízení, autor metodologie hodnocení říčních spekter.*

Další směřování

Prezentované metody budou v budoucnu dále rozvíjeny, a to jak po stránce přístrojového vybavení, tak po stránce metod analýzy. Ze současného pohledu se jeví jako perspektivní směr dalšího vývoje rozšířit online monitorování i na plynné složky jódu. Další příležitostí ke zlepšení může být i případné doplnění aerosolového měření o další detektory záření α/β , jejichž prostřednictvím by mohla být dále zvyšována citlivost detekčních algoritmů.

Stran vývoje matematických modelů bude jistě užitečné věnovat úsilí dalšímu průzkumu možností využití neuronových sítí a jejich kombinace s rSVD přístupem. Velkou výzvou do budoucna je rovněž automatizovaný přístup k lokaci zdroje pomocí disperzního modelu, který by doplnil současné trajektoriové výstupy.

Výše uvedené výsledky se týkaly zejména detekce umělých radionuklidů, ale online monitorování přináší cenné informace i o těch přírodních. Ty sice nejsou příliš zajímavé z pohledu radiační ochrany, ale zato je lze použít jako stopovače nejrůznějších atmosférických procesů, čímž by mohly být výsledky tohoto aplikovaného výzkumu použity i v souvisejících přírodovědných oborech.

LITERÁRNÍ ZDROJE

- Ahearne, J. F. (1980). *U. S. Nuclear Regulatory Commission annual report (1979). Annual report, No. 5, 1 October 1978-30 September 1979.*
- Alena Drábková (Editor). (2006). *Historie radiační ochrany v ČR - 10 let Státního ústavu radiační ochrany.* Státní ústav radiační ochrany. <https://www.suro.cz/cz/publikace/zpravy-o-cinnosti-suro/historie-radiacni-ochrany-v-cr>
- Baldi, P., & Hornik, K. (1989). Neural networks and principal component analysis: Learning from examples without local minima. *Neural Networks*, 2(1), 53–58. [https://doi.org/10.1016/0893-6080\(89\)90014-2](https://doi.org/10.1016/0893-6080(89)90014-2)
- Benamrane, Y., Wybo, J. L., & Armand, P. (2013). Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: What has changed in the use of atmospheric dispersion modeling? *Journal of Environmental Radioactivity*, 126, 239–252. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.07.009>
- Beresford, N. A., Barnett, C. L., Gashchak, S., Kashparov, V., Kirieiev, S. I., Levchuk, S., Morozova, V., Smith, J. T., & Wood, M. D. (2021). Wildfires in the Chornobyl exclusion zone—Risks and consequences. *Integrated Environmental Assessment and Management*, 17(6), 1141–1150. <https://doi.org/10.1002/ieam.4424>
- Brewer, A. W. (1949). Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 75(326), 351–363. <https://doi.org/10.1002/qj.49707532603>
- Carslaw, D. (2022, srpen 2). *openair book*. https://bookdown.org/david_carslaw/openair/
- Carslaw, D. C., & Ropkins, K. (2012). Openair - An r package for air quality data analysis. *Environmental Modelling and Software*, 27–28, 52–61. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2011.09.008>
- Chollet, F. and others. (2015). *Building Autoencoders in Keras*. GitHub. <https://github.com/keras-team/keras>
- de Meutter, P., Gueibe, C., Tomas, J., Outer, P. den, Apituley, A., Bruggeman, M., Camps, J., Delcloo, A., Knetsch, G. J., Roobol, L., & Verheyen, L. (2021). The assessment of the April 2020 chernobyl wildfires and their impact on Cs-137 levels in Belgium and The Netherlands. *Journal of Environmental Radioactivity*, 237, 106688. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106688>
- Dobson, G. M. B. D. (1956). Origin and distribution of the polyatomic molecules in the atmosphere. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 236(1205), 187–193. <https://doi.org/10.1098/rspa.1956.0127>

- Dowdall, M., Bondar, Y., Skipperud, L., Zabrotski, V., Pettersen, M. N., Selnaes, Ø. G., & Brown, J. E. (2017). Investigation of the vertical distribution and speciation of ¹³⁷Cs in soil profiles at burnt and unburnt forest sites in the Belarusian Exclusion Zone. *Journal of Environmental Radioactivity*, 175–176, 60–69. <https://doi.org/10.1016/J.JENVRAD.2017.04.009>
- Dragounová, L. (2020). *Standardní Zkušební postup SZP 11*. Státní ústav radiační ochrany.
- Eberth, J., & Simpson, J. (2008). From Ge(Li) detectors to gamma-ray tracking arrays-50 years of gamma spectroscopy with germanium detectors. In *Progress in Particle and Nuclear Physics* (Roč. 60, Issue 2, s. 283–337). Pergamon. <https://doi.org/10.1016/j.ppnp.2007.09.001>
- Eckart, C., & Young, G. (1936). The approximation of one matrix by another of lower rank. *Psychometrika*, 1(3), 211–218. <https://doi.org/10.1007/BF02288367>
- Erichson, N. B., Voronin, S., Brunton, S. L., & Kutz, J. N. (2019). Randomized matrix decompositions using R. *Journal of Statistical Software*, 89(1), 1–48. <https://doi.org/10.18637/jss.v089.i11>
- Evangelidou, N., Balkanski, Y., Cozic, A., Hao, W. M., & Møller, A. P. (2014). Wildfires in Chernobyl-contaminated forests and risks to the population and the environment: A new nuclear disaster about to happen? *Environment International*, 73, 346–358. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2014.08.012>
- Evangelidou, N., & Eckhardt, S. (2020). Uncovering transport, deposition and impact of radionuclides released after the early spring 2020 wildfires in the Chernobyl Exclusion Zone. *Scientific Reports*, 10(1). <https://doi.org/10.1038/s41598-020-67620-3>
- Fejgl, M., & Hýža, M. (2019). Development of an autonomous station for measurements of artificial gamma activity in surface water bodies. *Journal of Environmental Radioactivity*, 204, 42–48. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.04.001>
- Fejgl, M., & Hýža, M. (2020). Zdokonalení systému kontinuálního monitorování radioaktivní kontaminace povrchových vod využitím výpočetního algoritmu. *Vodohospodářské Technicko-Ekonomické Informace*, 62(4), 44. <https://doi.org/10.46555/vtei.2020.05.004>
- Fleming, Z. L., Monks, P. S., & Manning, A. J. (2012). Review: Untangling the influence of air-mass history in interpreting observed atmospheric composition. In *Atmospheric Research* (Roč. 104–105, s. 1–39). <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2011.09.009>
- Forrester, J. B., Carty, F. F., Comes, L., Hayes, J. C., Miley, H. S., Morris, S. J., Ripplinger, M., Slaugh, R. W., & van Davelaar, P. (2013). Engineering upgrades to the Radionuclide Aerosol Sampler/Analyzer for the CTBT International Monitoring System. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 296(2), 1055–1060. <https://doi.org/10.1007/s10967-012-2199-7>
- Fortin, C., Fèvre-Nollet, V., Cousin, F., Lebègue, P., & Louis, F. (2019). Box modelling of gas-phase atmospheric iodine chemical reactivity in case of a nuclear accident. *Atmospheric Environment*, 214, 116838. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.116838>

- Gaebler, P., Ceranna, L., Nooshiri, N., Barth, A., Cesca, S., Frei, M., Grünberg, I., Hartmann, G., Koch, K., Pilger, C., Ole Ross, J., & Dahm, T. (2019). A multi-technology analysis of the 2017 North Korean nuclear test. *Solid Earth*, *10*(1), 59–78. <https://doi.org/10.5194/se-10-59-2019>
- Garger, E. K., Hoffman, F. O., & Thiessen, K. M. (1997). Uncertainty of the long-term resuspension factor. *Atmospheric Environment*, *31*(11), 1647–1656. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(96\)00345-7](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(96)00345-7)
- Garland, J. A., & Pomeroy, I. R. (1994). Resuspension of fall-out material following the Chernobyl accident. *Journal of Aerosol Science*, *25*(5), 793–806. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(94\)90047-7](https://doi.org/10.1016/0021-8502(94)90047-7)
- Garland, J. A., & Wakeford, R. (2007). Atmospheric emissions from the Windscale accident of October 1957. *Atmospheric Environment*, *41*(18), 3904–3920. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.12.049>
- Gillis, N. (2014). The Why and How of Nonnegative Matrix Factorization. *Regularization, Optimization, Kernels, and Support Vector Machines*, 275–310.
- Golub, G. H., & Reinsch, C. (1970). Singular value decomposition and least squares solutions. *Numerische Mathematik*, *14*(5), 403–420. <https://doi.org/10.1007/BF02163027>
- Gueibe, C., Meutter, P. de, Delcloo, A., ... L. V.-S.-C. R., & 2020, undefined. (2020). Forest fires in the surroundings of Chernobyl: follow-up of potential radiological aspects. In *sckcen.be*. https://www.sckcen.be/sites/default/files/files/2020-04/Forest%20fires%20Chernobyl_Radiological%20follow%20up_20200430_1.pdf
- Hacker, B. C. (1987). *The dragon's tail: radiation safety in the Manhattan Project, 1942-1946*. University of California Press.
- Halko, N., Martinsson, P. G., & Tropp, J. A. (2011). Finding structure with randomness: Probabilistic algorithms for constructing approximate matrix decompositions. *SIAM Review*, *53*(2), 217–288. <https://doi.org/10.1137/090771806>
- Hersey, J. (1946, srpen 23). Hiroshima | The New Yorker. *The New Yorker*. <https://www.newyorker.com/magazine/1946/08/31/hiroshima>
- Higuchi, T. (2011). Radioactive fallout, the politics of risk, and the making of a global environmental crisis, 1954-1963 [Dissertation]. In *Georgetown University-Graduate School of Arts & Sciences*. Georgetown University.
- Hinds, W. C. (1999). *Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*. Wiley.
- Hirose, K. (2020). Atmospheric effects of Fukushima nuclear accident: A review from a sight of atmospheric monitoring. *Journal of Environmental Radioactivity*, *218*. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106240>

- Hoffmann, W., Kebeasy, R., & Firbas, P. (1999). Introduction to the verification regime of the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 113(1–4), 5–9. [https://doi.org/10.1016/S0031-9201\(99\)00027-8](https://doi.org/10.1016/S0031-9201(99)00027-8)
- Hopke, P. K. (2016). Review of receptor modeling methods for source apportionment. In *Journal of the Air and Waste Management Association* (Roč. 66, Issue 3, s. 237–259). Taylor and Francis Inc. <https://doi.org/10.1080/10962247.2016.1140693>
- Hýža, M., & Rulík, P. (2017). Low-level atmospheric radioactivity measurement using a NaI(Tl) spectrometer during aerosol sampling. *Applied Radiation and Isotopes*, 126, 225–227. <https://doi.org/10.1016/J.APRADISO.2016.12.046>
- Hýža, M., Rulík, P., & Bednář, V. (2019). Optimization of the radioactive aerosol sampling and measuring procedure with respect to radon concentration in the air. *Radiation Protection Dosimetry*, 186(2–3), 280–283. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncz218>
- Jones, S. (2008). Windscale and Kyshtym: a double anniversary. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(1), 1–6. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.10.002>
- Kaneyasu, N., Ohashi, H., Suzuki, F., Okuda, T., Ikemori, F., Akata, N., & Kogure, T. (2017). Weak size dependence of resuspended radiocesium adsorbed on soil particles collected after the Fukushima nuclear accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 172, 122–129. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.03.001>
- Kashparov, V. A., Lundin, S. M., Kadygrib, A. M., Protsak, V. P., Levchuk, S. E., Yoschenko, V. I., Kashpur, V. A., & Talerko, N. M. (2000). Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters. *Journal of Environmental Radioactivity*, 51(3), 281–298. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(00\)00082-5](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(00)00082-5)
- Kunz, E. (Ed.). (1987). *Zpráva o radiační situaci na území ČSSR po havárii jaderné elektrárny Černobyl*. Institut hygieny a epidemiologie Centrum hygieny záření. https://www.suro.cz/cz/publikace/cernobyl/zprava_1987.pdf
- Lapp, R. E. (1959). Sunshine and Darkness. *Bulletin of the Atomic Scientists*, 15(1), 27–29. <https://doi.org/10.1080/00963402.1959.11453918>
- LE, N. B. T., Korsakissok, I., Mallet, V., Périllat, R., & Mathieu, A. (2021). Uncertainty study on atmospheric dispersion simulations using meteorological ensembles with a Monte Carlo approach, applied to the Fukushima nuclear accident. *Atmospheric Environment: X*, 10, 100112. <https://doi.org/10.1016/j.aeaoa.2021.100112>
- Libby, W. F. (1956). RADIOACTIVE STRONTIUM FALLOUT. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 42(6), 365–390. <https://doi.org/10.1073/pnas.42.6.365>

- Machta, L. (1992). Finding the site of the first Soviet nuclear test in 1949. *Bulletin - American Meteorological Society*, 73(11), 1797–1806. [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1992\)073<1797:FTSOTF>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1992)073<1797:FTSOTF>2.0.CO;2)
- Machta, L. (2002). Meteorological benefits from atmospheric nuclear tests. *Health Physics*, 82(5), 635–643. <https://doi.org/10.1097/00004032-200205000-00010>
- Maiello, M. L., & Hoover, M. D. (2011). *Radioactive air sampling methods*. CRC Press.
- Malá, H., Rulík, P., Bečková, V., Mihalík, J., & Slezáková, M. (2013). Particle size distribution of radioactive aerosols after the Fukushima and the Chernobyl accidents. *Journal of Environmental Radioactivity*, 126, 92–98. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.07.016>
- Mariscotti, M. A. (1967). A method for automatic identification of peaks in the presence of background and its application to spectrum analysis. *Nuclear Instruments and Methods*, 50(2), 309–320. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(67\)90058-4](https://doi.org/10.1016/0029-554X(67)90058-4)
- Martell, E. A. (1959). Atmospheric aspects of strontium-90 fallout. *Science*, 129(3357), 1197–1206. <https://doi.org/10.1126/science.129.3357.1197>
- Masson, O. (b.r.). „Ring of Five” Task Group. Ziskáno 12. srpen 2022, z <https://www.iur-uir.org/en/pro/task-groups/id-22-ring-of-five-task-group>
- Masson, O., Romanenko, O., Saunier, O., Kirieiev, S., Protsak, V., Laptev, G., Voitsekhovych, O., Durand, V., Coppin, F., Steinhauser, G., de Vismes Ott, A., Renaud, P., Didier, D., Boulet, B., Morin, M., Hýža, M., Camps, J., Belyaeva, O., Dalheimer, A., ... Zorko, B. (2021). Europe-Wide Atmospheric Radionuclide Dispersion by Unprecedented Wildfires in the Chernobyl Exclusion Zone, April 2020. *Environmental Science and Technology*, 55(20), 13834–13848. <https://doi.org/10.1021/acs.est.1c03314>
- Masson, O., Steinhauser, G., Zok, D., Saunier, O., Angelov, H., Babić, D., Bečková, V., Bieringer, J., Bruggeman, M., Burbidge, C. I., Conil, S., Dalheimer, A., de Geer, L.-E., de Vismes Ott, A., Eleftheriadis, K., Estier, S., Fischer, H., Garavaglia, M. G., Gasco Leonarte, C., ... Zorko, B. (2019). Airborne concentrations and chemical considerations of radioactive ruthenium from an undeclared major nuclear release in 2017. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 116(34). <https://doi.org/10.1073/pnas.1907571116>
- Masson, O., Steinhauser, G., Wershofen, H., Mietelski, J. W., Fischer, H. W., Pourcelot, L., Saunier, O., Bieringer, J., Steinkopff, T., Hýža, M., Møller, B., Bowyer, T. W., Dalaka, E., Dalheimer, A., de Vismes-Ott, A., Eleftheriadis, K., Forte, M., Gasco Leonarte, C., Gorzkiewicz, K., ... Zorko, B. (2018). Potential Source Apportionment and Meteorological Conditions Involved in Airborne ¹³¹I Detections in January/February 2017 in Europe. *Environmental Science and Technology*, 52(15), 8488–8500. <https://doi.org/10.1021/acs.est.8b01810>

- Maxwell, R. M., & Anspaugh, L. R. (2011). An Improved model for prediction of resuspension. *Health Physics*, 101(6), 722–730. <https://doi.org/10.1097/HP.0b013e31821ddb07>
- Minty, B., & Hovgaard, J. (2002). Reducing noise in gamma-ray spectrometry using spectral component analysis. *Exploration Geophysics*, 33(4), 172. <https://doi.org/10.1071/EG02172>
- Minty, B. R. S., Mcfadden, P., & Kennett, B. L. N. (1998). *Multichannel processing for airborne gamma-ray spectrometry*. 63(6), 1971–1985.
- Moldan, B. (1990). *Životní prostředí České republiky : vývoj a stav do konce roku 1989* (B. Moldan, Ed.). Academia.
- Newman-Thacker, F., & Turnbull, L. (2021). Investigating the drivers of the unprecedented Chernobyl Power Plant Wildfire in April 2020 and its effects on 137Cs dispersal. *Natural Hazards*, 109(2), 1877–1897. <https://doi.org/10.1007/s11069-021-04902-7>
- Obukhov, A. M. (1971). Turbulence in an atmosphere with a non-uniform temperature. *Boundary-Layer Meteorology*, 2(1), 7–29. <https://doi.org/10.1007/BF00718085>
- Ochiai, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Akata, N., Ueda, S., Tokonami, S., & Hisamatsu, S. (2016). Temporal variation of post-accident atmospheric 137Cs in an evacuated area of Fukushima Prefecture: Size-dependent behaviors of 137Cs-bearing particles. *Journal of Environmental Radioactivity*, 165, 131–139. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.09.014>
- Papastefanou, C. (2008). Radioactive aerosols. In *Radioactivity in the Environment* (Roč. 12, s. 11–58). [https://doi.org/10.1016/S1569-4860\(07\)12002-7](https://doi.org/10.1016/S1569-4860(07)12002-7)
- Papastefanou, C., & Bondietti, E. A. (1987). Aerodynamic Size Associations of 212Pb and 214Pb in Ambient Aerosols. *Health Physics*, 53(5), 461–472. <https://doi.org/10.1097/00004032-198711000-00003>
- Perham, C. (1980). EPA's Role At Three Mile Island. *EPA Journal*. <https://archive.epa.gov/epa/aboutepa/epas-role-three-mile-island.html>
- Pilger, C., Ceranna, L., Ross, J. O., le Pichon, A., Mialle, P., & Garcés, M. A. (2015). CTBT infrasound network performance to detect the 2013 Russian fireball event. *Geophysical Research Letters*, 42(7), 2523–2531. <https://doi.org/10.1002/2015GL063482>
- Protsak, V., Voitsekhovych, O., & Laptev, G. (2020). Estimation of radioactive source term dynamics for atmospheric transport during wildfires in Chernobyl zone in spring 2020. In *uhmi.org.ua*. <https://uhmi.org.ua/msg/fire2020/analytical.pdf>
- Romanov, G. N., Nikipelov, B. v., & Grozhko, E. G. (1990). The Kyshtym Accident: Causes, Scale and Radiation Characteristics,. *Proceedings of Seminar on Comparative Assessment of Environmental Impact of Radionuclides Released During Three Major Nuclear Incidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl, Vol 1*, 25–40.

- Rosipal, R., & Krämer, N. (2006). Overview and recent advances in partial least squares. *Lecture Notes in Computer Science (Including Subseries Lecture Notes in Artificial Intelligence and Lecture Notes in Bioinformatics)*, 3940 LNCS, 34–51. https://doi.org/10.1007/11752790_2
- Rulík, P., Hýža, M., Bednář, V., & Skála, L. (2018). Zařízení pro automatický odběr, měření a hodnocení obsahu radionuklidů v aerosolech. *Bezpečnost Jaderné Energie*, 9/10(26), 241–246.
- Sangiorgi, M., Angel Hernández-Ceballos, M., Jackson, K., Cinelli, G., Bogucarskis, K., de Felice, L., Patrascu, A., & de Cort, M. (2020). The European Radiological Data Exchange Platform (EURDEP): 25 years of monitoring data exchange. *Earth System Science Data*, 12(1), 109–118. <https://doi.org/10.5194/essd-12-109-2020>
- Sportisse, B. (2007). A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment*, 41(13), 2683–2698. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.11.057>
- Stein, A. F., Draxler, R. R., Rolph, G. D., Stunder, B. J. B., Cohen, M. D., & Ngan, F. (2015). NOAA's hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system. In *Bulletin of the American Meteorological Society* (Roč. 96, Issue 12, s. 2059–2077). American Meteorological Society. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1>
- Stein, A. F., Draxler, R. R., Rolph, G. D., Stunder, B. J. B., Cohen, M. D., Ngan, F., Stein, A. F., Draxler, R. R., Rolph, G. D., Stunder, B. J. B., Cohen, M. D., & Ngan, F. (2015). NOAA's HYSPLIT Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 96(12), 2059–2077. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1>
- Tang, P., Kita, K., Igarashi, Y., Satou, Y., Hatanaka, K., Adachi, K., Kinase, T., Ninomiya, K., & Shinohara, A. (2022). Atmospheric resuspension of insoluble radioactive cesium-bearing particles found in the difficult-to-return area in Fukushima. *Progress in Earth and Planetary Science*, 9(1), 17. <https://doi.org/10.1186/s40645-022-00475-6>
- Tichý, O., Hýža, M., Evangelidou, N., & Šmídl, V. (2021). Real-time measurement of radionuclide concentrations and its impact on inverse modeling of ¹⁰⁶Ru release in the fall of 2017. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(2), 803–818. <https://doi.org/10.5194/amt-14-803-2021>
- Ulimoen, M., Berge, E., Klein, H., Salbu, B., & Lind, O. C. (2022). Comparing model skills for deterministic versus ensemble dispersion modelling: The Fukushima Daiichi NPP accident as a case study. *Science of the Total Environment*, 806, 150128. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.150128>
- UNSCEAR. (2000a). Exposures to the public from man-made sources of radiation. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, 158–291. <http://books.google.com/books?hl=en&lr=&id=57YmhD4ZBpQC&oi=fnd&pg=PA157&dq=Ex>

posures+to+the+public+from+man-
made+sources+of+radiation&ots=etAMsuvJua&sig=kkkOK0kyzeJFomj4P3LaZLUGMW0

UNSCEAR. (2000b). *UNSCEAR 2000 REPORT Vol. I SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION, Exposures and effects of the Chernobyl accident- ANNEX J*.
https://www.unscear.org/unscear/en/publications/2000_1.html

UNSCEAR. (2022). *UNSCEAR 2020/2021 Report, VOL II*. United Nations.
<https://doi.org/10.18356/9789210010047>

USAEC. (1953). *Worldwide Effects of Atomic Weapons: Project SUNSHINE*. RAND Corporation.
<https://www.rand.org/pubs/reports/R0251.html>

Wellings, J., Bedwell, P., Haywood, S. M., & Charnock, T. W. (2019). *Estimation of radiation doses from inhalation of resuspended materials in emergency situations*.

Yoschenko, V. I., Kashparov, V. A., Levchuk, S. E., Glukhovskiy, A. S., Khomutinin, Y. v., Protsak, V. P., Lundin, S. M., & Tschiersch, J. (2006). Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: Part II. Modeling the transport process. *Journal of Environmental Radioactivity*, 87(3), 260–278.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2005.12.003>

Yoschenko, V. I., Kashparov, V. A., Protsak, V. P., Lundin, S. M., Levchuk, S. E., Kadygrib, A. M., Zvarich, S. I., Khomutinin, Y. v., Maloshtan, I. M., Lanshin, V. P., Kovtun, M. v., & Tschiersch, J. (2006). Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: Part I. Fire experiments. *Journal of Environmental Radioactivity*, 86(2), 143–163. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2005.08.003>

Zhang, L., Gong, S., Padro, J., & Barrie, L. (2001). A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmospheric Environment*, 35(3), 549–560.
[https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00326-5](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00326-5)

Zhang, L., & He, Z. (2014). Technical Note: An empirical algorithm estimating dry deposition velocity of fine, coarse and giant particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(7), 3729–3737.
<https://doi.org/10.5194/acp-14-3729-2014>

PŘÍLOHA A – SOUVISEJÍCÍ VÝZKUMNÉ PROJEKTY

Vývoj metod online monitorování radioaktivního aerosolu probíhal od roku 2015 v rámci různých výzkumných projektů řešených v SÚRO, v.v.i. Níže jsou uvedeny bližší informace vztahující se k řešeným tématům, výstupům a zapojení autora této práce do jejich řešení.

VIRA (2020–2021) – *Včasná identifikace nízkých koncentrací radioaktivního aerosolu na území České republiky*, kód projektu: VH20202021048, poskytovatel: Ministerstvo vnitra, program: Program bezpečnostního výzkumu pro potřeby státu 2016–2021

- **Podíl autora na výzkumu**

Hlavní řešitel – návrh a vývoj metodologie analýzy online spekter HPGe detektoru.

HAMRAD (2015–2018) – *Havarijní měřič radioaktivního aerosolu s dálkovým přenosem dat*, kód projektu VI20152018042, poskytovatel: Ministerstvo vnitra, program: Bezpečnostní výzkum České republiky 2015–2022

- **Podíl autora na výzkumu**

Spoluřešitel – návrh algoritmů analýzy sekvenčních spekter, optimalizace parametrů měření vzhledem k aktivitě dceřiných produktů radonu deponovaných na filtru. Spoluautor designu zařízení, experimentální činnost (kalibrace, testování filtračních materiálů,...)

Metody online monitorování radioaktivního aerosolu byly rovněž předmětem interního výzkumu v SÚRO. V rámci interního výzkumu byl autorem navržen a realizován první prototyp HPGe spektrometrického modulu a v roce 2021 i jeho upgradované verze zkonstruovaná na základě autorova zadání firmou Nuvia, a.s.

PŘÍLOHA B – VYBRANÉ VÝSLEDKY ANALÝZY VELIKOSTNÍ DISTRIBUCE ATMOSFÉRICKÉHO AEROSOLU

Interní výzkum SÚRO

Odpovědný řešitel: Miroslav Hýža

Spoluřešitelé: H. Malá, P. Rulík, V. Bečková, A. Kelnarová, T. Svoboda

Spolupracovali: Věra Bečková, Jan Lenk, Jiří Baloun, Jana Petrášková, Helena Pilátová, Jan Lušňák, Jiří Rada, Tereza Doksanská, Kristýna Gincelová

Cíle studie

V období 2015–2018 byl prováděn kontinuální monitoring velikostní distribuce aerosolů spojených s RN detekovatelnými pomocí spektrometrie gama. Cílem studie bylo stanovení jejich pozadové velikostní distribuce a její případné sezónní a lokální variace na třech odběrových místech ČR.

Metody

Odběry byly prováděny pomocí 4 zařízení: tři 6stupňových ($34 \text{ m}^3/\text{h}$) a jednoho 9stupňového ($0,42 \text{ m}^3/\text{h}$) kaskádního impaktoru. Odběrová zařízení byla umístěna na stojanech ve výšce přibližně 1,5 m nad povrchem. Jako sběrné vložky byly použity sklovláknové, nebo celulózové filtry umístěné na každém stupni impaktoru a podložný filtr ze stejného materiálu následující za posledním stupněm. Meze třídění byly pro 6stupňový: [0,39; 0,69; 1,3; 2,1; 4,2; 10,2] μm a pro 9stupňový: [0,16; 0,32; 0,53; 0,95; 1,7; 2,65; 4,4; 11, 18] μm .

Impaktorové odběry aerosolu jsou zatíženy nejistotami v důsledku efektů, jako jsou například ztráty aerosolu na stěnách vlivem difuze, odskoky aerosolových částic a jejich strhávání proudem vzduchu z vyšších pater do nižších, nestabilitou nastaveného průtoku a systematickou chybou danou nejistotou kalibrace. Uspořádáním odběru lze zajistit, že celková nejistota odběru obvykle nepřevýší 10–15 %.

Jako charakteristika velikostního rozdělení byl užit aktivitní medián aerodynamického průměru (AMAD) a geometrická směrodatná odchylka (GSD). Pro výpočet AMAD a GSD byl vytvořen algoritmus, který odhaduje parametry lognormálního rozdělení

metodou maximální věrohodnosti s uvážením nejistot stanovení aktivity na jednotlivých stupních impaktoru. Tímto přístupem jsou AMAD a GSD odhadovány pro n realizací aktivit, které jsou vzorkovány z normálního rozdělení $N(\mu, \sigma)$, kde μ je aktivita na daném stupni a σ je její nejistota. Výstupem jsou distribuce parametrů AMAD a GSD, na základě kterých jsou určeny jejich střední hodnoty.

Pro analýzu sezónních a lokálních variací byl použit Kruskal-Wallisův neparametrický test z důvodu heteroskedasticity dat.

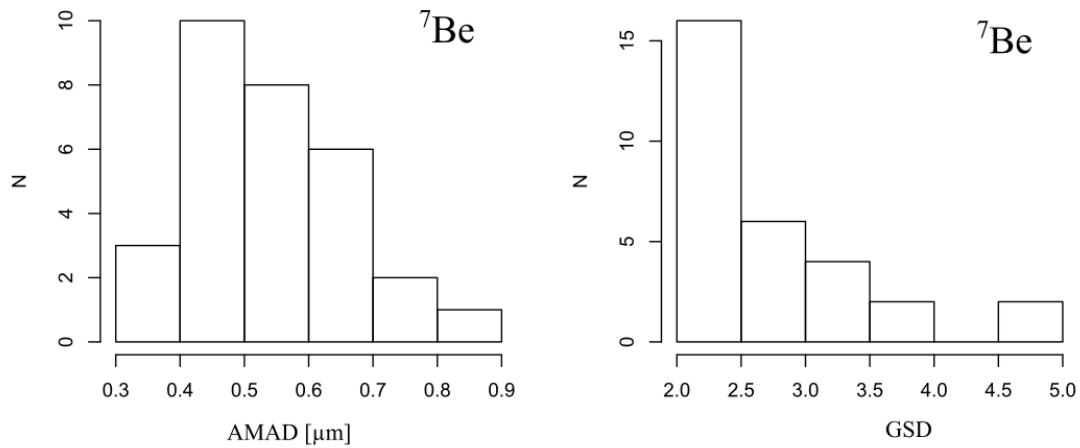
Výsledky

V časových řadách nebyly pozorovány sezónní ani lokální variace, a to i přesto, že se odběrové místo Piletice nachází bezprostředně u zemědělsky obhospodařovaného území. Prvotní předpoklad o větší míře resuspenze a tedy i vyšších hodnotách AMAD a GSD v tomto místě oproti městskému prostředí v Praze a Ostravě se nepotvrdil.

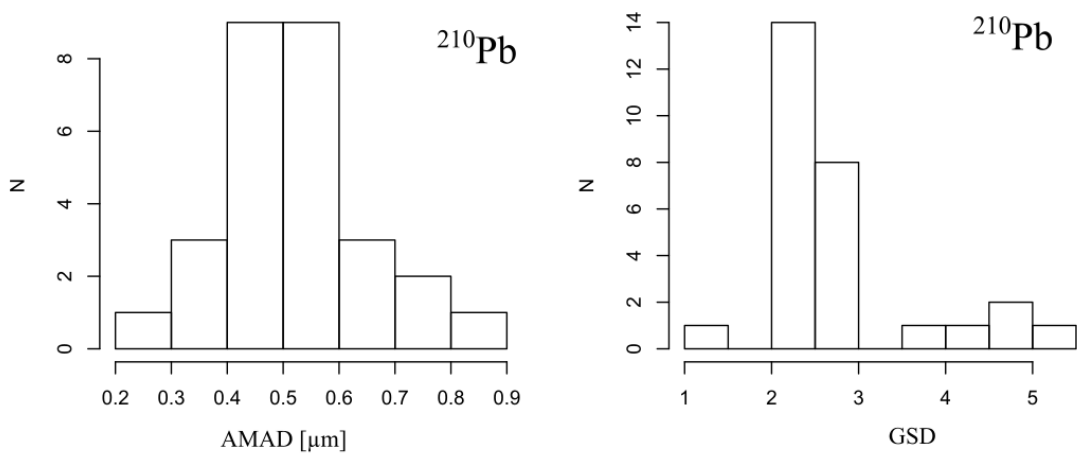
Vzhledem k výše uvedenému lze konstatovat, že distribuce ^7Be a ^{210}Pb nevykazují statisticky významnou variabilitu v závislosti na místě a ročním období odběru, viz **Obrázky B-1 až B-6**.

Kromě ^7Be a ^{210}Pb bylo navíc radiochemicky stanoveno ^{210}Po . Velikostní distribuce ^{210}Po zjištěná z jednoho odběru v září 2016 je charakterizována AMAD 0.21 μm a vysokým GSD 7.7. Velikostní distribuce ^{137}Cs ve spojeném vzorku pokrývající 4 měsíce odběru byla charakterizována AMAD 0.36 μm a vysokým GSD 9.2.

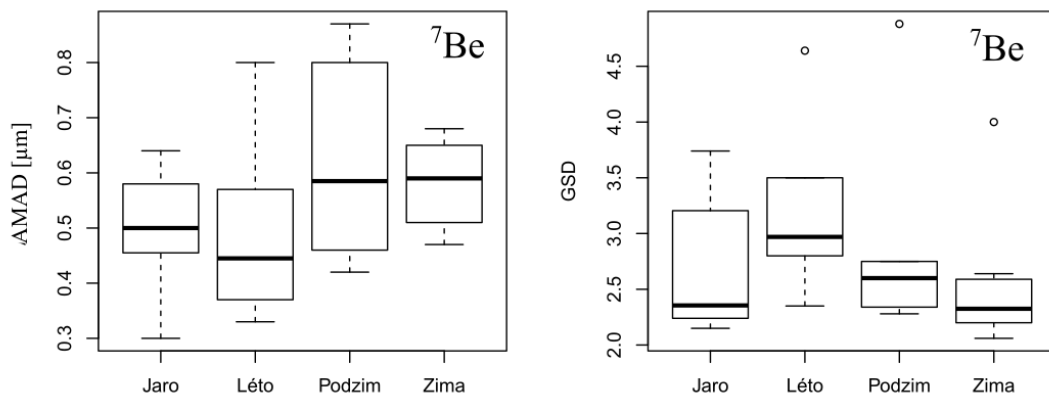
Obrázek B-1 Distribuce pozorovaných AMAD a GSD pro ${}^7\text{Be}$. Střední hodnota AMAD = $0.55 \mu\text{m}$, GSD = 2.8.



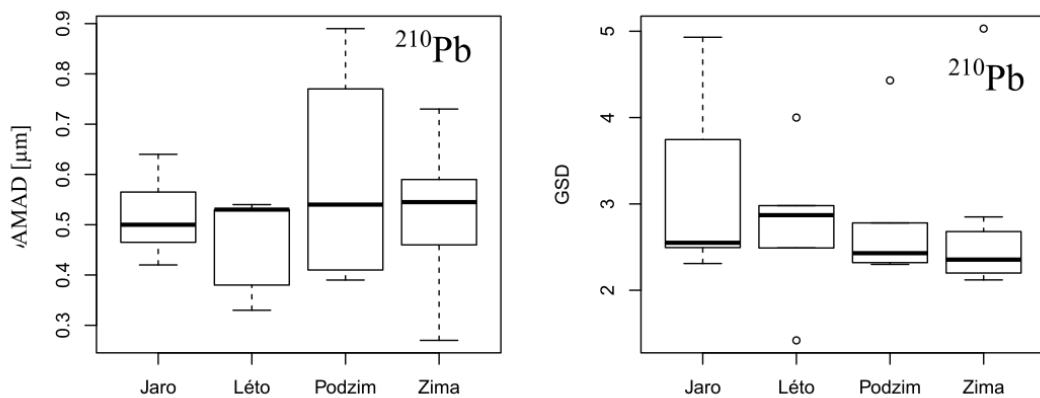
Obrázek B-2 Distribuce pozorovaných AMAD a GSD pro ${}^{210}\text{Pb}$. Střední hodnota AMAD = $0.53 \mu\text{m}$, GSD = 3.3.



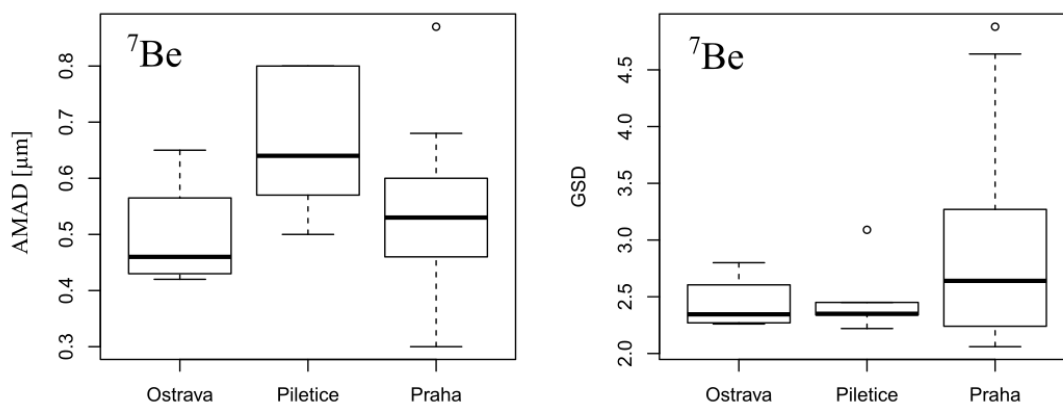
Obrázek B-3 Sezónní variace AMAD a GSD pro ^{7}Be v závislosti na ročním období. Na hladině významnosti $\alpha = 0.05$ nebyla sezónnost prokázána.



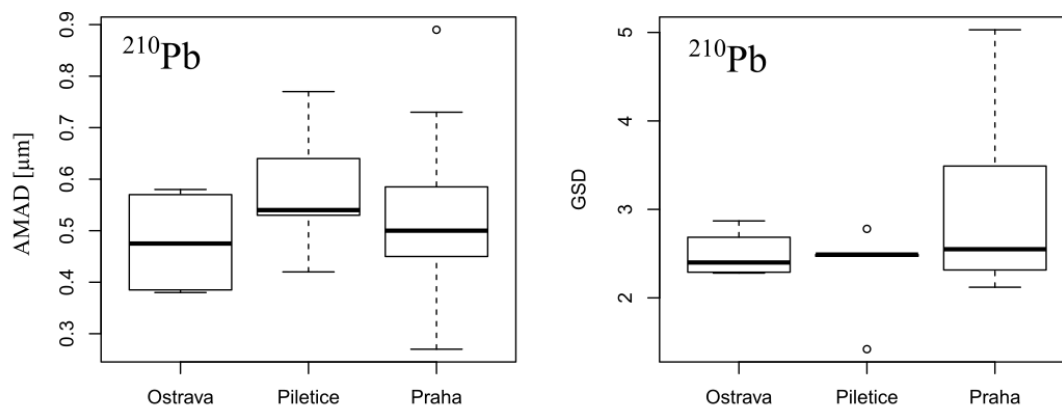
Obrázek B-4 Sezónní variace AMAD a GSD pro ^{210}Pb v závislosti na ročním období. Na hladině významnosti $\alpha = 0.05$ nebyla sezónnost prokázána.



Obrázek B-5 Lokální variace AMAD a GSD pro ${}^7\text{Be}$ v závislosti na místě odběru. Na hladině významnosti $\alpha = 0.05$ nebyla závislost na místě odběru prokázána.



Obrázek B-6 Lokální variace AMAD a GSD pro ${}^{210}\text{Pb}$ v závislosti na místě odběru. Na hladině významnosti $\alpha = 0.05$ nebyla závislost na místě odběru prokázána.



Atmos. Meas. Tech., 14, 803–818, 2021
<https://doi.org/10.5194/amt-14-803-2021>
© Author(s) 2021. This work is distributed under
the Creative Commons Attribution 4.0 License.



Atmospheric
Measurement
Techniques
Open Access
EGU

Real-time measurement of radionuclide concentrations and its impact on inverse modeling of ^{106}Ru release in the fall of 2017

Ondřej Tichý¹, Miroslav Hýža², Nikolaos Evangeliou³, and Václav Šmídl¹

¹Institute of Information Theory and Automation, Czech Academy of Sciences, Prague, Czech Republic

²National Radiation Protection Institute, Prague, Czech Republic

³Norwegian Institute for Air Research (NILU), Kjeller, Norway

Correspondence: Ondřej Tichý (otichy@utia.cas.cz)

Received: 25 May 2020 – Discussion started: 8 September 2020

Revised: 1 December 2020 – Accepted: 10 December 2020 – Published: 2 February 2021

Abstract. Low concentrations of ^{106}Ru were detected across Europe at the turn of September and October 2017. The origin of ^{106}Ru has still not been confirmed; however, current studies agree that the release occurred probably near Mayak in the southern Urals. The source reconstructions are mostly based on an analysis of concentration measurements coupled with an atmospheric transport model. Since reasonable temporal resolution of concentration measurements is crucial for proper source term reconstruction, the standard 1-week sampling interval could be limiting. In this paper, we present an investigation of the usability of the newly developed AMARA (Autonomous Monitor of Atmospheric Radioactive Aerosol) and CEGAM (carousel gamma spectrometry) real-time monitoring systems, which are based on the gamma-ray counting of aerosol filters and allow for determining the moment when ^{106}Ru arrived at the monitoring site within approx. 1 h and detecting activity concentrations as low as several mBq m^{-3} in 4 h intervals. These high-resolution data were used for inverse modeling of the ^{106}Ru release. We perform backward runs of the Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) atmospheric transport model driven with meteorological data from the Global Forecast System (GFS), and we construct a source–receptor sensitivity (SRS) matrix for each grid cell of our domain. Then, we use our least squares with adaptive prior covariance (LS-APC) method to estimate possible locations of the release and the source term of the release. With Czech monitoring data, the use of concentration measurements from the standard regime and from the real-time regime is compared, and a better source reconstruction for the real-time data is demonstrated in the sense of the loca-

tion of the source and also the temporal resolution of the source. The estimated release location, Mayak, and the total estimated source term, $237 \pm 107 \text{ TBq}$, are in agreement with previous studies. Finally, the results based on the Czech monitoring data are validated with the IAEA-reported (International Atomic Energy Agency) dataset with a much better spatial resolution, and the agreement between the IAEA dataset and our reconstruction is demonstrated. In addition, we validated our findings also using the FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion) model coupled with meteorological analyses from the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF).

1 Introduction

At the turn of September and October 2017, low concentrations of ^{106}Ru of unknown origin were detected in the atmosphere in the Czech Republic. Immediate communication with other European laboratories involved in the RO5 (Ring of Five) network (Masson et al., 2011) confirmed that this was a Europe-wide occurrence. Although the concentration was low (tens of mBq m^{-3}) and was of no health risk, the unknown origin of ^{106}Ru raised concerns. Therefore, very shortly after the first detections, efforts were made to estimate the source location based on the RO5 data. Initial analyses pointed to a possible source located to the east of the Czech Republic. As the dataset grew, this estimate was refined to the Ural region as the most probable location (Kovalets and Romanenko, 2017). The released ^{106}Ru activ-

ity was estimated to be several hundred TBq (Saunier et al., 2019; Western et al., 2020).

Since ^{106}Ru is a fission product produced in a nuclear reactor, the question arose about the nature of the source. A nuclear reactor accident was rejected because, in this case, other radionuclides would have been detected besides ^{106}Ru , as during the Chernobyl nuclear power plant (NPP) accident (UNSCEAR, 2000). For example, during post-Chernobyl monitoring, the detected ^{106}Ru was higher by 2 or 3 orders of magnitude and was accompanied by a complex mix of radionuclides, including ^{131}I , ^{132}Te , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{140}La , and ^{103}Ru (Chz, 1987).

Other working hypotheses included the melting of a radioisotope thermoelectric generator (RTG) or of a medical source, since ^{106}Ru is used in medicine for the treatment of ophthalmic tumors (Takiar et al., 2015). In several samples where the ^{106}Ru activity was relatively high, we also detected ^{103}Ru isotope but at much lower concentrations. The activity ratio of $^{106}\text{Ru}/^{103}\text{Ru}$ was approx. 4000 (after the Chernobyl accident, the ratio was approximately 0.12), which suggests that the ruthenium was extracted from relatively fresh nuclear fuel (approximately 2 years old). Since medical sources and RTG would explain neither the occurrence of ^{106}Ru nor the large source of several hundred TBq, fresh nuclear fuel is the most likely candidate.

In the end, an industrial source was identified as the most probable explanation – most likely a fuel reprocessing plant. This conclusion is supported by historical evidence, since we have observed several such events in the past – Tomsk (Tcherkezian et al., 1995), Savannah River (Carlton and Denham, 1997), and La Hague (ACRO, 2002). Based on these reports, it can be concluded that a selective release of ^{106}Ru is possible during certain stages of fuel reprocessing or vitrification of fuel in the form of highly volatile RuO_4 which can escape into the environment even when aerosol filters are employed. RuO_4 then condenses in the colder air and can be further transported over long distances attached to atmospheric aerosol. There are two known plants in the southern Ural region which come into consideration – Mayak and Dimitrovgrad. Both are located within the region estimated by atmospheric transport modeling (ATM). Moreover, measurements performed by Roshydromet (Russian Federal Service for Hydrometeorology and Environmental Monitoring) confirm a positive detection of ^{106}Ru in aerosols and in the fallout in the Chelyabinsk region (Shershakov et al., 2019).

Multiple investigations using different datasets and methodologies have now been performed with the same conclusion, indicating the Mayak plant as the probable source location (Masson et al., 2019; Saunier et al., 2019; Maffezzoli et al., 2019; De Meutter et al., 2020; Le Brazidec et al., 2020). Masson et al. (2019) presented a comprehensive event analysis, including a detailed radoruthenium forensic investigation, and speculated on the possibility of ^{106}Ru release during the production of the ^{144}Ce source for the SOX (short distance neutrino oscillations with Borexino) project at the

Gran Sasso National Laboratory (also suggested by Bossew et al., 2019). Nonetheless, the Russian authorities deny any leakage from the Mayak plant (Nikitina and Slobodenyuk, 2018). Current estimates of ^{106}Ru source location and source term are mainly based on an analysis of ambient measurements of ^{106}Ru concentrations.

There is always a trade-off between sensitivity and timely reporting of concentration results, and the standard procedure provides a rather poor time resolution of the concentration monitoring data for the purposes of ATM analyses. The time delay between the possible arrival of the contamination at the monitoring site and its detection can easily be as long as 1 week. Long-term shortening of the sampling interval below 1 d is virtually unachievable, mainly for logistic reasons.

This limitation is of great research interest at the National Radiation Protection Institute (NRPI), Czech Republic, where near real-time monitoring systems (AMARA and CEGAM; see Sect. 2 for a detailed description) are currently under development. Both systems yield minimum detectable activity (MDAC) at a level of 1 mBq m^{-3} , which was sufficient to detect ^{106}Ru during the 2017 episode. We were able to perform an experimental run of the AMARA device, and we managed to detect the exact moment when the contamination arrived. These real-time monitoring data were then used for source localization, and the results were compared with the standard time resolution. For this purpose, we use a Bayesian inversion method, called the least squares with an adaptive prior covariance (LS-APC) method (Tichý et al., 2016), which was later extended also for the source location problem (Tichý et al., 2017).

Our aim is to use the data from the Czech Radiation Monitoring Network to investigate two points. First, we will study the influence of the real-time monitoring data on the resulting estimate of the temporal profile of the emission. Our hypothesis is that the use of real-time monitoring data should lead to more time-specific estimates. Second, we will investigate and discuss what information can be estimated from the Czech monitoring data only. This task is very challenging, since it implies a very sparse monitoring network due to the small area of the Czech Republic in comparison with the relevant Eurasian spatial domain. The results will be validated and will be compared with results of the much larger International Atomic Energy Agency (IAEA) dataset (IAEA, 2017).

2 Measurement methodology and datasets

2.1 Standard sampling and measurement procedure

In the Czech Radiation Monitoring Network (RMN), aerosol samples are taken from 10 permanent monitoring sites which are equipped with high-volume aerosol samplers with a flow rate in the range of $150\text{--}900 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$. In addition to these monitoring sites, radionuclides are also monitored in the lo-

cal networks in the vicinity of the nuclear power plants in the Czech Republic – these data are not included in the analysis.

The standard sampling frequency is usually once or twice a week. Combined weekly samples are subjected to semiconductor gamma spectrometry, with no further treatment, at four RMN laboratories. Preliminary measurement of aerosol filters starts a few hours after the end of the sampling to allow time for the short-lived radon progenies to decay. Otherwise, they would significantly affect the measurement sensitivity. The preliminary measurements last approximately 5 h, after which the detection limit (minimum detectable activity – MDAC) is at a level of $10\ \mu\text{Bq m}^{-3}$. Consequently, a detailed measurement lasting approx. 5 d is performed, after which the sub- $\mu\text{Bq m}^{-3}$ MDAC level is achieved.

^{106}Ru is a β emitter and therefore cannot itself be detected by means of gamma-ray spectrometry. ^{106}Ru activity is determined on the basis of its short-lived progeny ^{106}Rh , which emits several gamma rays of convenient energy and intensity (622 and 1050 keV being the most prominent). In order to determine the activity accurately, it is necessary to correct for true coincidence effects, as ^{106}Rh emits gamma photons in cascades. By failing to do this, one can easily underestimate the activity by 15 %–20 %.

2.2 Real-time sampling and measurement procedure

2.2.1 AMARA system

The AMARA system employs a fully continuous measurement regime where the aerosol filter is counted via gamma-ray spectrometry already during sampling using a high-volume ($900\ \text{m}^3\ \text{h}^{-1}$) sampler. In this setup, shown in Fig. 1, a spectrometric module consisting of a high-purity germanium (HPGe) detector is placed directly above the aerosol filter. This straightforward solution benefits from its simplicity and from the real-time nature of the measurement. However, the detection limits are higher due to the very high and variable natural background caused mainly by ^{222}Rn and ^{220}Rn decay products. Our approach for suppressing the high and widely variable radon background is based on the NASVD (Noise Adjusted Singular Value Decomposition) algorithm (Minty and Hovgaard, 2002) and consists of extracting the characteristic spectral shapes from a large dataset of background measurements. We adopted this approach already in the previous version of the AMARA system, which was based on a NaI (Tl) detector. The implementation details are described by Hýža and Rulík (2017), and a demonstration of the signal treatment is displayed in Fig. 2.

2.2.2 CEGAM system

The CEGAM system is based on semicontinuous sampling where samples are taken at preset intervals and then measured via gamma spectrometry. The device is based on a carousel sampling changer, which moves the aerosol filters

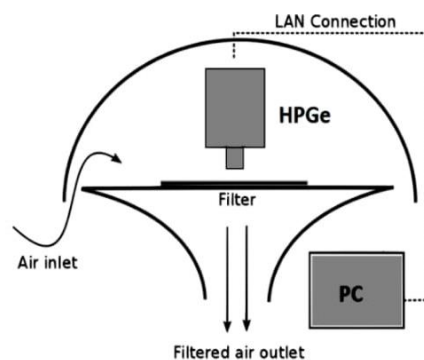


Figure 1. AMARA system schematics; the activity deposition is measured using an HPGe detector above an aerosol filter during sampling. LAN: local area network.

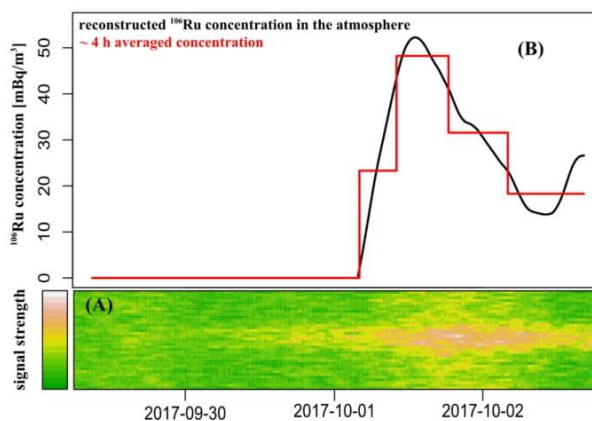


Figure 2. The response of the AMARA system to the ^{106}Ru contamination passing over during the corresponding sampling interval. (a) The ^{106}Ru signal increase in the 615–630 keV energy region after subtracting the radon background. (b) The example reconstructed real-time ^{106}Ru concentration and its 4 h averaged values, which corresponds to the CEGAM time resolution. Please note that the date format in this figure is year month day (yyyy-mm-dd).

between the sampling position and the measuring position; see the configuration in Fig. 3. This allows for the CEGAM's HPGe spectrometer to be placed inside a heavy lead shielding, and it is also possible to let the radon progenies decay before the measurement. The natural background level is therefore much lower in comparison with the AMARA system, and it yields similar MDAC values but at a much lower flow rate ($10\ \text{m}^3\ \text{h}^{-1}$).

2.2.3 Measurement procedure and system comparison

Both the AMARA and CEGAM systems employ an electrically cooled HPGe (Ortec–Canberra) detector in a temperature- and humidity-controlled environment in order to ensure smooth continuous operation even during demand-

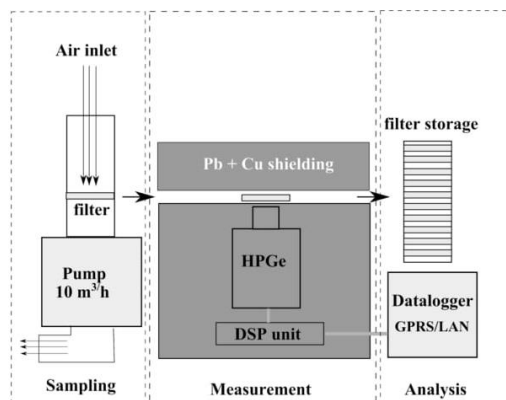


Figure 3. CEGAM system schematics. The activity deposition is measured using an HPGe detector above an aerosol filter after sampling in radiation shielding. LAN: local area network; DSP: digital signal processing; GPRS: general packet radio service.

ing weather conditions. The signal processing is done by digital multi-channel (DSPEC–Lynx) analyzer. The eventual gain shift is automatically corrected by a stabilization algorithm based on the position of background peaks. The efficiency calibrations were done experimentally using aerosol filters spiked with standard activity solutions provided by the Czech Metrology Institute. For the purpose of calibration and measurement respectively, the correction to the true coincidence summation was taken into account. As the AMARA system operates in a continuous regime, the spectrum acquisition time was set to 5 min in order to make full use of its time resolution. Consequently, the running spectral sums of arbitrary lengths can be constructed. The actual activity values are then computed using the numerical derivative of smoothed cumulative response. On the other hand, the time resolution of the CEGAM system is limited by the carousel changer time steps. Typically, the spectrum acquisition time is set to 24 h, and in case of emergency it is shortened to 4 h or less.

The inherent time resolution of the monitoring system is inevitably related to the accuracy of the contamination arrival time. For the ^{106}Ru case, the AMARA system estimated its arrival with approx. 1 h accuracy depending on the chosen level of statistical significance and the type of statistical test.

Although the detector efficiency and flow rate are determined relatively accurately, there are other effects negatively influencing the final activity uncertainty. For instance, the radon decay product concentration and therefore the MDAC and the activity uncertainty vary significantly. In case of positive detection, there is also an additional uncertainty contribution due to the deposition dynamics, as the system needs to subtract the contribution from the already deposited contamination. Comparing the real-time values with those obtained by laboratory measurements (^{106}Ru case or natural ^7Be), we

estimate the uncertainty of (10–15) % for the 4 h integration time and the activity of several mBq m^{-3} .

Although both systems are intended for the rapid detection of artificial radionuclides in the air, they differ in their typical use. The CEGAM system is an autonomous system with a high filter capacity, and it is suitable for remote places with difficult access for the operating personnel. The power consumption is also much lower in comparison with the AMARA system due to the employment of a low-volume sampler with an adjustable throughput. During a normal situation, the CEGAM system could be used within a monitoring network as a standby device (low flow rate and long sampling intervals) which could quickly switch to an emergency mode (higher flow rate and more frequent sampling). The switching command could be based on some prior information about arriving contamination or on the positive detection in a laboratory or by a more sensitive or rapid device, such as the AMARA system.

The AMARA system is intended to be an upgrade to an already existing monitoring site equipped with a high-volume sampler with operational personnel because the filters are not changed automatically. The advantage of this approach is a better time resolution and therefore rapid response. Monitoring sites with high-volume samplers are usually equipped with a gamma-ray spectrometry laboratory, and therefore the filters from AMARA are consequently measured in a dedicated counting room and potentially investigated further by radiochemical procedures to determine the activities of non-gamma-ray emitters. The proximity of the laboratory also solves to a certain degree the dilemma between the sensitivity of measurement and sampling duration, as the final most sensitive measurement will be performed in a laboratory after the sampling using the standard analytic procedure.

Both systems together provide a very good solution for rapid radiation monitoring response to various release scenarios. The technical parameters are summarized in Table 1.

2.3 Dataset description

The monitoring data come from 10 standard monitoring sites in the Czech Republic from the time period between 25 September 2017 and 13 October 2017. Once ^{106}Ru was confirmed by the AMARA system (located in Prague), the filters were changed, and the monitoring interval was shortened at all monitoring sites. The previous, less sensitive version of the AMARA system equipped with a NaI (TI) spectrometer operated in the Hradec Králové location. Unfortunately, the CEGAM system was not yet operational during the ^{106}Ru incident; hence, all used data come from the AMARA system.

A total of 47 samples were collected, and 24 of them were positive results with reported activity above the MDAC level. Four distinct datasets were derived on the basis of this monitoring campaign:

Table 1. Technical specification of the AMARA and CEGAM systems. FWHM: full width at half maximum.

Parameter	AMARA	CEGAM
Detector type	HPGe (electrically cooled)	HPGe (electrically cooled)
Relative efficiency	30 %	50 %
FWHM	1.9 keV	1.9 keV
Shielding	None	10 cm Pb
Filter size	57 cm × 27 cm	10 cm diameter disc
Filter material	FPM 1545	GF/A glass microfiber
Spectrum stabilization	Automatic	Automatic
Mode of operation	Continuous	Carousel type sample changer
MDAC	$\sim \text{mBq m}^{-3}$ ^a	$\sim \text{mBq m}^{-3}$ ^b
Flow rate	$900 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$	0 to $10 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$
Filter cartridge capacity	No cartridge	300 filters

^a Integration time of 1 h and 12 h of sampling. ^b Per 4 h sampling–measurement period.

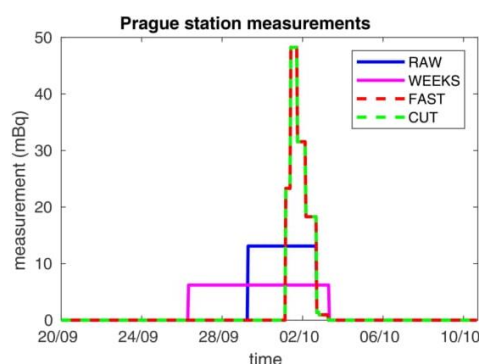
1. The *RAW dataset* comprises raw monitoring, as reported by the individual standard monitoring sites. The real-time measurements are not included.
2. The *WEEKS dataset* is derived from the raw dataset by weekly averaging. This dataset corresponds to the standard RMN monitoring regime.
3. The *FAST dataset* comprises raw data complemented by real-time values from the AMARA and CEGAM (simulated) systems. The integration window was set within the interval of 3–13 h during the concentration peak period.
4. The *CUT dataset* is created by cutting off the time interval between the start of sampling and the arrival of the ^{106}Ru contamination at the particular monitoring site. As there was no real-time measurement apart from the Prague and Hradec Králové AMARA measurements, the arrival times were estimated on the basis of an overall analysis of the atmospheric transport across the Czech Republic, using the Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPPLIT) model.

Note that the artificial WEEKS and CUT datasets are derived from the RAW and FAST datasets and are rather experimental. All four datasets are attached as a Supplement to this article.

For illustration, the measurements from the Prague station (equipped by the AMARA system) are given in Fig. 4, where much better temporal specificity is demonstrated.

3 Inverse modeling

The general purpose of inverse atmospheric modeling is to estimate the time profile of an unknown emission, called the source term, in the so-called top-down approach (Nisbet and Weiss, 2010), where ambient measurements are combined

**Figure 4.** The measurements from the Prague station are displayed for each dataset using coloring given in the legend.

with the result of an atmospheric transport model (ATM). The source term can be estimated using optimization of the differences between the measurements and the corresponding simulated values predicted by an ATM. An even more challenging task is to identify the location of the release. This can be done, e.g., using possible source location selection and comparison as in the case of the ^{131}I release in January–February 2017 (Masson et al., 2018), using computed correlation or cost function maps as in the case of radioxenon after the third North Korean nuclear test (De Meutter et al., 2018), or using a Bayesian approach as in the case of the ^{131}I release in the fall of 2011 (Tichý et al., 2017) or in the case of the ^{75}Se leakage in 2019 (De Meutter and Hoffman, 2020).

In this paper, we follow the general concept of a linear model of the atmospheric dispersion using a source–receptor sensitivity (SRS) matrix (e.g., Seibert, 2001; Seibert and Frank, 2004). Here, an atmospheric transport model is used to calculate the linear relation between the potential source and the measured concentrations. Aggregating all possible time steps of the release in a source term vector $\mathbf{x} \in \mathbf{R}^n$ and

measurements from all sites and times in the vector $\mathbf{y} \in \mathbf{R}^p$, we can define the model

$$\mathbf{y} = \mathbf{M}\mathbf{x} + \mathbf{e}, \quad (1)$$

where $\mathbf{M} \in \mathbf{R}^{p \times n}$ is the SRS matrix and $\mathbf{e} \in \mathbf{R}^p$ is an observation error, where the model errors and the measurements errors are aggregated. This concept has been largely used previously to recover the source term within larger-scale scenarios such as nuclear power plant accidents (Stohl et al., 2012; Evangeliou et al., 2017), estimates of the emission of greenhouse gases (Stohl et al., 2009), or volcanic emission (Kristiansen et al., 2010).

The estimation of the source term vector \mathbf{x} from Eq. (1) is non-trivial, since the SRS matrix \mathbf{M} is typically ill-conditioned and some regularization is needed. One possible approach is to minimize a suitable cost function (Eckhardt et al., 2008; Evangeliou et al., 2017) such as

$$J = (\mathbf{y} - \mathbf{M}\mathbf{x})^T \mathbf{R} (\mathbf{y} - \mathbf{M}\mathbf{x}) + \mathbf{x}^T \mathbf{B} \mathbf{x} + \epsilon \mathbf{x}^T \mathbf{D}^T \mathbf{D} \mathbf{x}, \quad (2)$$

where the first term stands for the deviation of the model from the measurement, including the error in the meteorological data; the second term penalizes high values of the source term using diagonal matrix \mathbf{B} ; and the third term favors the smoothness of the estimated source term using tridiagonal matrix \mathbf{D} (numerically representing the second derivative) and weighting coefficient ϵ . The key issue of the minimization is then to select matrices \mathbf{R} , \mathbf{B} , and ϵ .

The minimization of Eq. (2) can be interpreted using a probabilistic model, and the proper Bayesian inference can be used to estimate the source term \mathbf{x} . Consider the logarithm of the likelihood function

$$\begin{aligned} \ln p(\mathbf{y}|\mathbf{x}, \mathbf{R}) &= \ln \mathcal{N}(\mathbf{M}\mathbf{x}, \mathbf{R}^{-1}) \\ &\propto (\mathbf{y} - \mathbf{M}\mathbf{x})^T \mathbf{R} (\mathbf{y} - \mathbf{M}\mathbf{x}), \end{aligned} \quad (3)$$

where the symbol \propto denotes equality up to the normalizing constant and then $\ln p(\mathbf{y}|\mathbf{x}, \mathbf{R})$ is the probabilistic equivalent to the first term of J . Equivalents for the second term and for the third term can be found in a similar way. However, one benefit of the Bayesian inference is that the elements of \mathbf{R} , \mathbf{B} , and ϵ do not need to be fixed in advance but can also be estimated and optimized within the method. The second benefit is the model selection property of the Bayesian inference (Bernardo and Smith, 2009). This approach can be used to select the most likely setting of the dispersion model or the most likely matrix \mathbf{M} when it is computed for multiple locations (Tichý et al., 2017).

In the following sections, we review the Bayesian inversion method based on similar probabilistic formulation as in Eq. (3), which is called the least squares with adaptive prior covariance (LS-APC) (Tichý et al., 2016). We then discuss an extension of the method using a covariance model of the measurements.

3.1 Probabilistic LS-APC model

The probabilistic inversion model of Tichý et al. (2016), called LS-APC (least squares with adaptive prior covariance), is briefly reviewed, and its extension is discussed. In Tichý et al. (2016), the covariance structure has been simplified as $\mathbf{R} = \omega \mathbf{I}$, where \mathbf{I} is the identity matrix. This simplification may be misleading. We therefore consider the likelihood in Eq. (3) with covariance \mathbf{R} scaled by the scalar parameter ω being considered unknown. In variational Bayesian inference, all unknown parameters need to be accompanied by their prior distribution. We select the gamma distribution for ω due to its conjugacy with the Gaussian likelihood (Tipping and Bishop, 1999), obtaining the data model in the form of

$$p(\mathbf{y}|\mathbf{x}, \omega) = \mathcal{N}(\mathbf{M}\mathbf{x}, \omega^{-1} \mathbf{R}^{-1}), \quad (4)$$

$$p(\omega) = \mathcal{G}(\vartheta_0, \rho_0), \quad (5)$$

where ϑ_0 and ρ_0 are selected constants needed for numerical stability; however, they are selected to be very low, e.g., 10^{-10} , providing a non-informative prior. The construction of the precision matrix \mathbf{R} (inverse covariance) will be discussed in the next section.

The prior model of \mathbf{x} is a probabilistic relaxation of the second and third terms in Eq. (2). The prior is chosen to be Gaussian truncated to positive support (notation $t\mathcal{N}(\mu, \sigma, [a, b])$; see Tichý et al., 2016, for details) with a covariance matrix in the specific form of the Cholesky decomposition of

$$p(\mathbf{x}|\mathbf{Y}, \mathbf{L}) = t\mathcal{N}\left(\mathbf{0}, \left(\mathbf{L}\mathbf{Y}\mathbf{L}^T\right)^{-1}, [0, +\infty]\right), \quad (6)$$

where \mathbf{Y} is a diagonal matrix with diagonal entries v_j and \mathbf{L} is a lower bidiagonal matrix with ones on the diagonal and sub-diagonal entries of l_j . The prior models for the unknowns v_1, \dots, v_n and l_1, \dots, l_{n-1} are selected as

$$p(v_j) = \mathcal{G}(\alpha_0, \beta_0), \quad (7)$$

$$p(l_j|\psi_j) = \mathcal{N}(-1, \psi_j^{-1}), \quad (8)$$

$$p(\psi_j) = \mathcal{G}(\zeta_0, \eta_0), \quad (9)$$

where parameters of v_j model the sparsity of the source term \mathbf{x} and parameters of l_j model the smoothness using prior selection of the mean value as -1 . The prior constants α_0 and β_0 are selected similarly to Eq. (5) as 10^{-10} , while the prior constants ζ_0 and η_0 are selected as 10^{-2} to favor a smooth solution; see the discussion in Tichý et al. (2016) for more details. We also note that the algorithm is shown to be robust with respect to the choice of starting and tuning parameters; see the discussion in Tichý et al. (2020) for more details.

The key parameter in the inversion method, which has not yet been discussed, is the error covariance matrix \mathbf{R} in Eq. (4). The definition of this matrix will be given and will be discussed in the next section.

3.2 Measurement error covariance

There are various approaches in the literature for selecting the shape of the covariance matrix \mathbf{R} . A straightforward assumption is the diagonal model with the same (Tichý et al., 2016; Liu et al., 2017) entries where this scalar value can be estimated. When considering different entries on the diagonal of \mathbf{R} , they may be selected on the basis of physical information, when available, rather than by estimating them because numerical issues arise during convergence (Berchet et al., 2013). A common assumption is to compose the diagonal entries from three sources of error: (i) the absolute error of the measurement, (ii) the relative error of the measurement, and (iii) the application-dependent error, such as the model–observation mismatch (Brunner et al., 2012; Song et al., 2015) or the error-based differences between observations and simulations (Henne et al., 2016).

Similarly to Stohl et al. (2012) and Evangeliou et al. (2017), we adopt the first two error terms in our covariance structure while introducing the third term based on the length of the measurement. In sum, the \mathbf{R} is

$$\mathbf{R} = \text{diag} \sqrt{\sigma_{\text{abs}}^2 + (\sigma_{\text{rel}} \circ \mathbf{y})^2 + \frac{1}{\sigma_{\text{length}}^2}}, \quad (10)$$

where σ_{abs}^2 is the absolute measurement error which is selected between 0.2 and 1.4 mBq based on the maximum a posteriori estimate; σ_{rel} is the uncertainty level of measurements, which is between 5.5 % and 30 % for our dataset; and $1/\sigma_{\text{length}}^2$ is the term considering the length of the measurement as $\sigma_{\text{length}} = \frac{\text{measurement hours}}{6\text{h}}$ (in mBq) where the selection of a 6 h window is motivated by the Global Forecast System (GFS) meteorological data resolution. Here, a shorter measurement time implies higher uncertainty, and a longer measurement time implies lower uncertainty.

3.3 Variational Bayesian inference and source location

Within the variational Bayesian (VB) framework (Šmídl and Quinn, 2006), the posterior distributions are found in the same functional form as their priors. The moments of the posteriors are determined using an iterative algorithm with details in Tichý et al. (2016). Here, the reference MATLAB implementation can be downloaded as a Supplement. The method will be denoted here as the LS-APC-VB method.

Moreover, we consider the scenario where we have a finite set of SRS matrices $\{\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2, \dots, \mathbf{M}_r\}$, representing different considered locations of the release here. For each SRS matrix from the set, we can evaluate the posterior probability $p(\mathbf{M} = \mathbf{M}_k | \mathbf{y})$ as

$$p(\mathbf{M} = \mathbf{M}_k | \mathbf{y}) \propto p(\mathbf{M} = \mathbf{M}_k) \exp(\mathcal{L}_{\mathbf{M}_k}), \quad (11)$$

$$k = 1, \dots, r,$$

where $p(\mathbf{M} = \mathbf{M}_k)$ is the prior probability of \mathbf{M}_k which can be omitted here, since each location has the same prior prob-

ability and $\mathcal{L}_{\mathbf{M}_k}$ is a variational lower bound on $p(\mathbf{y} | \mathbf{M}_k)$ (Bishop, 2006). Finally, the term $\mathcal{L}_{\mathbf{M}_k}$ can be computed as (Tichý et al., 2017)

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_{\mathbf{M}_k} = & \text{E}[\ln p(\mathbf{y}, \mathbf{x}, \Upsilon, \mathbf{L}, \boldsymbol{\psi}, \omega, \mathbf{M}_k)] - \text{E}[\ln \tilde{p}(\omega)] \\ & - \text{E}[\ln \tilde{p}(\mathbf{x})] - \text{E}[\ln \tilde{p}(\Upsilon)] - \text{E}[\ln \tilde{p}(\mathbf{L})] \\ & - \text{E}[\ln \tilde{p}(\boldsymbol{\psi})], \end{aligned} \quad (12)$$

where $\text{E}[\cdot]$ denotes the expected value with respect to the distribution of the variable in its argument and $\tilde{p}(\cdot)$ is approximate posterior probability distributions. These terms are given in the Supplement of Tichý et al. (2017).

Note that to display and to compare the computed probabilities for each computational domain in following sections, we need to normalize results due to the proportional equality in Eq. (11). We use normalization using the maximum of each domain so that the maximum of each normalized domain is equal to 1.

4 Experiments and discussion

The aims of our experiments are to estimate the location of the ¹⁰⁶Ru source, to estimate the source term, and to compare results obtained using four datasets from the Czech Radiation Monitoring Network introduced in Sect. 2 and with results obtained using the dataset reported by the International Atomic Energy Agency (IAEA) (IAEA, 2017). For this purpose, we use the HYSPLIT atmospheric transport model (Stein et al., 2015; Draxler and Hess, 1997), coupled with the NCEP–NOAA (National Centers for Environmental Prediction–National Oceanic and Atmospheric Administration) Global Forecast System (GFS) meteorological data.

To validate our results, we also use the FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion) model (Pisso et al., 2019) coupled with meteorological analyses from the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) to study the release based on the location selected using HYSPLIT model simulations.

4.1 Atmospheric transport modeling

4.1.1 HYSPLIT model configuration

We use the HYSPLIT model in backward mode to compute all the required SRS matrices for a domain. The spatial domain is selected to cover the region spanning from 5 to 115° E in longitude and from 25 to 65° N in latitude, covering central and eastern Europe and the western half of the Russian Federation. Note that the displayed domain in the following figures is cropped in order to focus on the important area only. Spatially, the domain was discretized with a resolution of $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Vertically, there is no discretization of the domain, and sensitivities are calculated for a layer 0–300 m above the ground, which allows for both ground releases and

somewhat elevated releases, e.g., through a stack. The temporal resolution is selected as 6 h, starting on 20 September and ending on 10 October 2017. Runs were forced with GFS meteorological fields with a horizontal resolution of $0.5^\circ \times 0.5^\circ$, 26 vertical layers, and 6 h temporal resolution.

The SRS matrices for the domain are computed from HYSPLIT backward runs for each domain grid cell. The backward run configuration is selected, since the number of domain grid cells (17 600) is much higher than the number of measuring sites (tens, depending on the dataset, or hundreds in the case of the IAEA dataset). Each backward run starts at the point location of each measuring site and releases particles during the period corresponding to the measurement time of the sample. For each run, 1 million particles were simulated. Each of the backward runs corresponding to one measurement provides an SRS field of a particular measurement to all spatiotemporal sources in the selected domain. We assume that the release occurred from a point source and that we can therefore calculate SRS matrices for the whole domain at once. We end up with 17 600 SRS matrices for each dataset, all of which are source location candidates.

4.1.2 FLEXPART model configuration

FLEXPART version 10.4 (Pisso et al., 2019) releases computational particles that are tracked in time following 3-hourly operational meteorological analyses from the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) with 137 vertical layers and a horizontal resolution of $1^\circ \times 1^\circ$. The model accounts for dry and wet deposition (Grythe et al., 2017), turbulence (Cassiani et al., 2015), unresolved mesoscale motions (Stohl et al., 2005), and convection (Forster et al., 2007). SRSs were calculated for 30 d backward in time, at temporal intervals that matched measurements at each receptor site. ^{106}Ru is tracked assuming gravitational settling for spherical particles with an aerosol mean diameter of $0.6\ \mu\text{m}$ and a normalized standard deviation of 3.3 and a particle density of $2500\ \text{kg m}^{-3}$ (Masson et al., 2019).

4.2 Results for the Czech monitoring data

For each dataset and each SRS matrix, we apply the LS-APC-VB method to compute the probability of each spatial grid cell according to Eq. (11). Note that no prior information on source location, $p(\mathbf{M} = \mathbf{M}_k)$, in Eq. (11) is used. This corresponds to the assumption that all locations are equally possible. The resulting maps with source location probabilities for the RAW (top left), WEEKS (top right), FAST (bottom left), and CUT (bottom right) datasets are displayed in Fig. 5. Here, a darker color means a more probable location of the release while the scale is relative and dimensionless due to the proportional equality in Eq. (11).

In all four cases, an estimated probability region of source locations forms the strip spanning from southern Romania to

approximately the Ob River in the Russian Federation. Notably, these regions are computed on the basis of data from the Czech monitoring stations only. Limited ability of the method to determine one specific location was therefore expected. During the period in question, the wind mostly blew towards the west, which is in agreement with the probable source region located to the east of the Czech Republic. The RAW dataset tends to prefer the northern part of the estimated source location strip, leaving the south part less probable. Similar behavior is observed in the case of the WEEKS dataset, where, in addition, low probability was also observed in wide areas in the south and north of the strip. This is probably caused by the lower temporal resolution of the measurements, implying a wider possibility of radionuclide transport. The results obtained using the FAST and CUT datasets are more homogeneous, covering the whole strip. However, the CUT dataset provides locations with very low probability inside the strip. These are probably artifacts caused by the artificial adjustment of the data. Note that better source location is possible with better spatial distribution of the measuring sites. This is, indeed, available and will be discussed in Sect. 4.3 on the IAEA dataset.

Based on Fig. 5 and a review of the situation in the literature (see Table 2), we consider four source locations. Two of them are Russian nuclear facilities capable of producing a significant amount of ^{106}Ru (Saunier et al., 2019; Masson et al., 2019; Sørensen, 2018): the Research Institute of Atomic Reactors (RIAR) in Dimitrovgrad (location 1) and the Mayak Production Association, a spent fuel reprocessing facility in Ozersk (location 2); see Fig. 6. Location 3 is selected as a location with high probability in all four datasets and is situated to the east of Perm, to the north of the Mayak location. Location 4 is situated in southern Romania and is also a candidate according to all datasets. We are aware that, according to further analyses (Le Brazidec et al., 2020; Saunier et al., 2019; Shershakov et al., 2019; De Meutter et al., 2020; Western et al., 2020), all locations except Mayak, location 2, could be rejected. However, we have considered them here, since they are candidate locations based on just Czech monitoring data. Dimitrovgrad, location 1, was later rejected due to inconsistency with the concentration measurements to the south and east of Dimitrovgrad (Saunier et al., 2019; Maffezzoli et al., 2019). Location 3 is hypothetical, with no known nuclear facility around the location capable of producing a substantial amount of ^{106}Ru that would explain the concentration measurements thousands of kilometers away from this location. A release at location 4 in southern Romania would contradict ground-based observations to the east of the location and was thus also rejected (see Masson et al., 2019). Nevertheless, we will discuss all four possible source terms in these locations in this section, in order to demonstrate the effects of the fast measuring systems.

The estimated source terms are displayed in Fig. 7 for all the considered datasets and locations; see the titles and la-

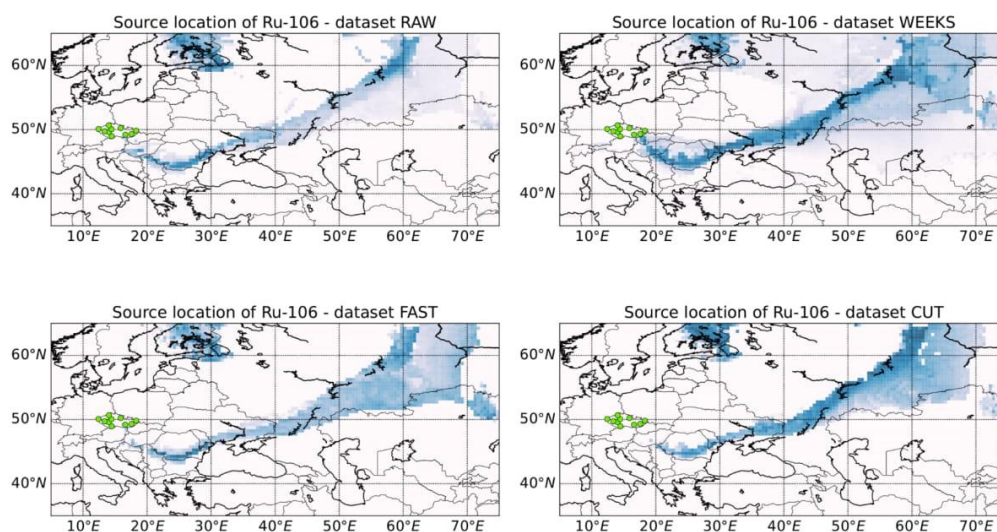


Figure 5. Source location of the ^{106}Ru release via the marginal log likelihood, where the observed data are explained by a release from a grid cell using the LS-APC-VB method HYSPLIT atmospheric transport model coupled with GFS 0.5° meteorological data. The dataset that has been used is indicated in the titles of each map. The measuring sites are displayed using green dots.

Table 2. This table summarizes and compares previous studies on the ^{106}Ru release in 2017, focusing on the total release, the source location, and the temporal character. The last row contains results based on the Czech FAST dataset.

Study	Probable source location	Total release	Temporal character (year 2017)
Kovalets and Romanenko (2017)	Urals, southern Russia	1 TBq to 1 PBq	–
Sørensen (2018)	Dimitrovgrad or Mayak	< 1.1 PBq	26 September, between 05:00 and 13:00 (Mayak)
De Meutter et al. (2020)	Mayak	< 1 PBq	–
Maffezzoli et al. (2019)	Mayak	–	–
Shershakov et al. (2019)	Mayak	~ 500 TBq	25 and 26 September
Saunier et al. (2019)	Mayak	250 ± 13 TBq	26 September (small activity also on 23 and 24 September)
Le Brazidec et al. (2020)	Mayak	Between 100 and 200 TBq	26 September
Western et al. (2020)	Mayak	441 ± 13 TBq	24 September, between 12:00 and 18:00
Source term based on Czech FAST dataset	Mayak	237 ± 107 TBq	Between 06:00 on 25 September and 06:00 on 26 September

bels. Note that in Fig. 7 we have cropped zero activities at the beginning and at the end of the source terms to maintain better visibility. All source terms are associated with the 95 % (2σ) highest posterior density region, using gray-filled regions. The total estimated activities are further summarized in Table 3. Note that only the Dimitrovgrad and Mayak locations are in agreement with the previously reported total activities of approximately 100–500 TBq (Shershakov et al.,

2019; Saunier et al., 2019; Le Brazidec et al., 2020; Western et al., 2020). Estimates from all datasets for these locations fit this interval.

As regards the temporal specification of the release, the estimated lengths of the release are displayed in Table 4. The release probably occurred at Mayak between 25 and 26 September; see the literature review in Table 2. Shershakov et al. (2019) estimated the 2 d interval (both 25

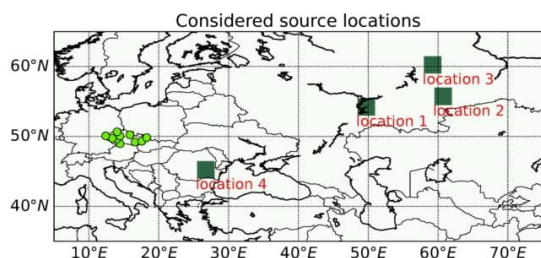


Figure 6. The four considered locations are displayed using green squares and labels. The measuring sites are displayed using green dots.

Table 3. Estimated total source terms in TBq for a specific dataset (columns) and for a specific location (rows). ST: source term.

Estimated total ST (TBq)	RAW	WEEKS	FAST	CUT
Location 1 (Dimitrovgrad)	352	363	241	439
Location 2 (Mayak)	245	203	237	445
Location 3 (north of Mayak)	1737	1755	1583	2075
Location 4 (southern Romania)	853	248	787	603

and 26 September), while further analyses by Saunier et al. (2019) and by Le Brazidec et al. (2020) indicate a higher probability of the release on 26 September, with a possible minor release on 23 and 24 September (Saunier et al., 2019). This is consistent with our findings, where 26 September was estimated using the WEEKS and CUT datasets; most of 25 and 26 September was estimated using the RAW dataset; and the time period between 06:00 on 25 September and 06:00 on 26 September was estimated by the FAST dataset. Further validation with the IAEA dataset, Sect. 4.3, shows that the estimates from the WEEKS and FAST datasets are in better agreement with the IAEA-reported concentration measurements than the estimates from the RAW and CUT datasets. Considering that the bulk of the release was probably within 1 d, we conclude that the FAST dataset provides the most consistent results, estimating a 1 d (24 h) release for locations 1, 2, and 3 and 30 h for location 4. The RAW dataset estimated that the release lasted between 30 and 36 h. Wider ranges were obtained in the case of the WEEKS dataset (between 18 and 96 h) and the CUT dataset (between 18 and 66 h). This wide ranges of the release from different locations are probably caused by the natural assumption of the LS-APC model that the shorter release is more probable than a longer one using selection of a zero prior mean value of the source term in Eq. (6). These findings support the hypothesis that the fast measuring systems have better time specificity than the standard measurement procedure.

4.3 Validation and comparison with the IAEA dataset

The same atmospheric transport modeling procedure as in Sect. 4.1 is applied here to the dataset of the ^{106}Ru measure-

Table 4. Estimated length of non-zero activity (higher than 1 TBq in a period of 6 h) of source terms in hours for a specific dataset (columns) and for a specific location (rows).

Estimated length	RAW	WEEKS	FAST	CUT
Location 1 (Dimitrovgrad)	36	78	24	42
Location 2 (Mayak)	36	18	24	18
Location 3 (north of Mayak)	30	42	24	30
Location 4 (southern Romania)	30	96	30	66

ments available from the IAEA report (IAEA, 2017). This consists of 451 relevant measurements, mostly from northern, eastern, and central Europe and the Russian Federation; see Fig. 10 for the exact locations of the measuring sites. This dataset will serve as a validation set (Czech monitoring data have been removed).

First, scatterplots between the measured data reported by the IAEA and a reconstruction using estimated source terms from the four studied Czech datasets studied here are displayed in Fig. 8 for location 2, Mayak. Here, the same colors as in Fig. 7 for each dataset are used. The scatterplots are accompanied by the computed correlation coefficients (R value) and correlation coefficients of the logarithm of concentrations (Rlog value) given in the legend of each plot. We observed that the highest correlations coefficients are for the WEEKS (0.383) and FAST (0.381) datasets. The RAW dataset has a lower correlation coefficient (0.378), and the CUT dataset has a significantly lower correlation coefficient (0.345). Similar results are obtained also for correlation coefficients of the logarithm of concentrations. This demonstrates that the fast measuring systems provide comparable or even better results than the standard measurement procedure. The artificially constructed CUT dataset has a significantly lower agreement with the IAEA dataset, which may indicate, e.g., inaccuracy in cutting the time intervals of the measurements in this dataset.

Second, the scatterplots between the measured data reported by the IAEA and the reconstruction using the FAST dataset for all four considered locations are displayed in Fig. 9, accompanied by the computed correlation coefficients and correlation coefficients of the logarithm of concentrations. Here, the reconstruction for location 2 (Mayak) is in better agreement with the IAEA data than any other considered location. Note that similar results are also obtained for all other datasets, indicating that the Mayak location is the most consistent with the IAEA dataset. This confirms the findings of previous studies (Saunier et al., 2019; Maffezzoli et al., 2019; De Meutter et al., 2018; Le Brazidec et al., 2020), which suggest the Mayak location as the most probable.

Third, as for the Czech monitoring data, the source location methodology from Sect. 3.3 is also applied to the IAEA dataset. The results are displayed in Fig. 10. Again, a darker color denotes a more likely location of the release, while the

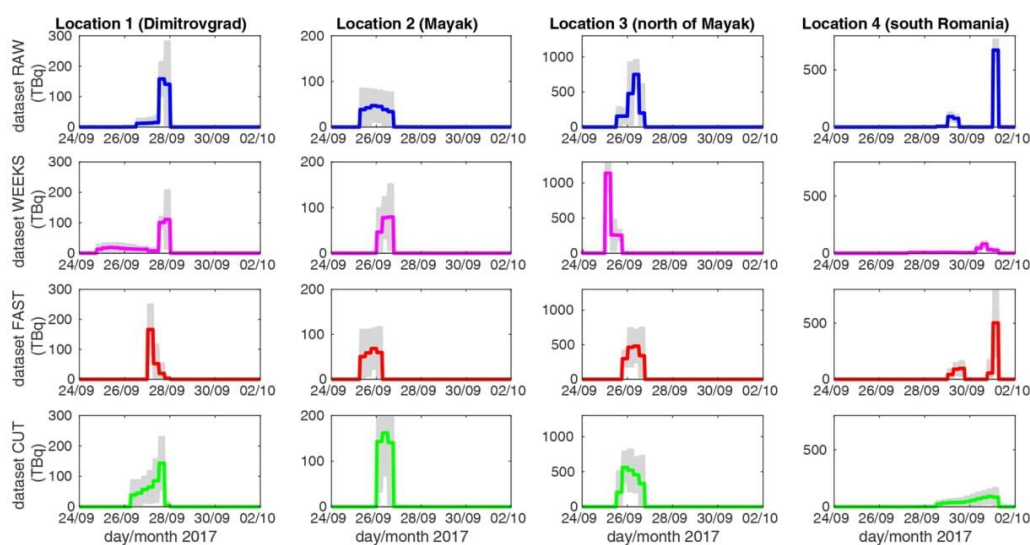


Figure 7. Estimated source terms from the locations considered in Fig. 6 (indicated in the titles of each column) for the RAW (blue lines), WEEKS (magenta lines), FAST (red lines), and CUT (green lines) datasets. The estimated source terms are accompanied by the 95 % uncertainty regions (gray-filled regions). Note that the vertical axis has a different scales for each location.

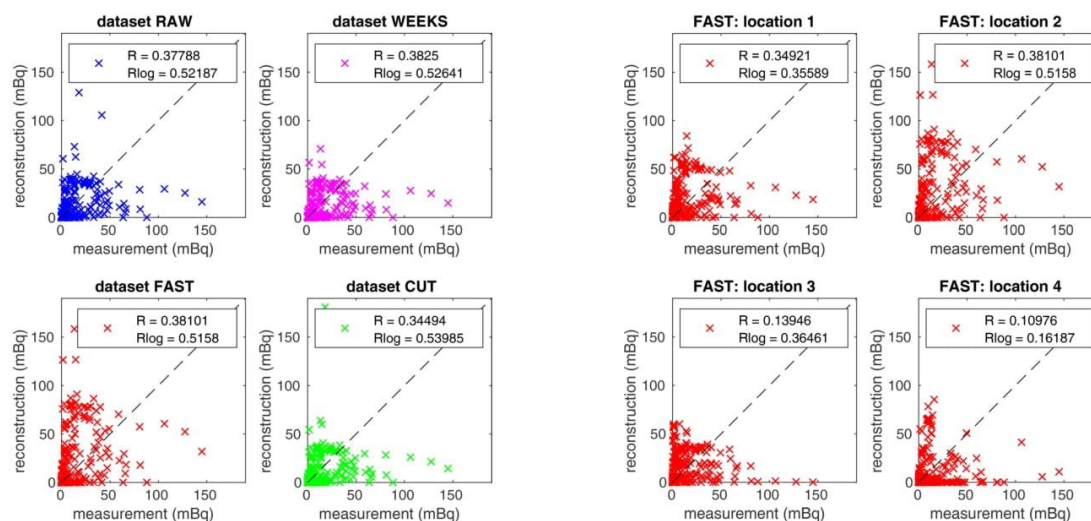


Figure 8. Scatterplots between the IAEA measurements and reconstructions using the RAW, WEEKS, FAST, and CUT datasets (specified in titles) for location 2, Mayak. Computed correlation coefficients and correlation coefficients of the logarithm of concentrations are given in the legends.

Figure 9. Scatterplots between the IAEA measurements and reconstructions using the FAST dataset for all four considered locations (specified in the titles). Computed correlation coefficients and correlation coefficients of the logarithm of concentrations are given in the legends.

scale is relative and dimensionless due to the proportional equality in Eq. (11). In direct comparison with the source locations using the smaller datasets studied in Fig. 5, the patterns are very similar. Indeed, the source location using the IAEA dataset rejected locations that cannot be rejected on

the basis of the Czech data alone, due to the lack of data; see, e.g., the locations in Romania, Ukraine, and Finland. However, the estimates using all datasets in the southern Urals are consistent with the IAEA dataset results and also with, e.g., the results of Saunier et al. (2019). For a numeric com-

parison of the source location maps using the Czech datasets and the map using the IAEA dataset, we compute four statistical coefficients used for evaluations of atmospheric modeling results. Concretely, we compute the normalized mean square error (NMSE) which may be, however, biased (Poli and Cirillo, 1993). Therefore, we also compute the normalized mean square error of the distribution of the normalized ratios (NNR) suggested by Poli and Cirillo (1993) accompanied also by the figure of merit in space (FMS) (Abida and Bocquet, 2009) and the fractional bias (FB) (Chang and Hanna, 2004). Note that coefficients closer to zeros are better in all cases except the FMS, where higher is better. These statistical coefficients are defined as

$$\text{NMSE} = \frac{\frac{1}{q} \sum_{j=1}^q (\mathbf{p}_{\text{IAEA},j} - \mathbf{p}_{\text{set},j})^2}{\left(\frac{1}{q} \sum_{j=1}^q \mathbf{p}_{\text{IAEA},j}\right) \left(\frac{1}{q} \sum_{j=1}^q \mathbf{p}_{\text{set},j}\right)}, \quad (13)$$

$$\text{NNR} = \frac{\sum_{j=1}^q \left(1 - \exp\left(-\left|\ln \frac{\mathbf{p}_{\text{IAEA},j}}{\mathbf{p}_{\text{set},j}}\right|\right)\right)^2}{\sum_{j=1}^q \exp\left(-\left|\ln \frac{\mathbf{p}_{\text{IAEA},j}}{\mathbf{p}_{\text{set},j}}\right|\right)}, \quad (14)$$

$$\text{FMS} = \frac{\sum_{j=1}^q \min(\mathbf{p}_{\text{IAEA},j}, \mathbf{p}_{\text{set},j})}{\sum_{j=1}^q \max(\mathbf{p}_{\text{IAEA},j}, \mathbf{p}_{\text{set},j})}, \quad (15)$$

$$\text{FB} = 2 \frac{\frac{1}{q} \sum_{j=1}^q \mathbf{p}_{\text{IAEA},j} - \frac{1}{q} \sum_{j=1}^q \mathbf{p}_{\text{set},j}}{\frac{1}{q} \sum_{j=1}^q \mathbf{p}_{\text{IAEA},j} + \frac{1}{q} \sum_{j=1}^q \mathbf{p}_{\text{set},j}}, \quad (16)$$

where q is the number of map tiles, \mathbf{p}_{IAEA} is the vector with the probabilities of the source location computed using the IAEA dataset, and \mathbf{p}_{set} is the vector with the probabilities of the source location computed using the selected Czech dataset. The results are summarized in Fig. 10, below the probability map.

We conclude that in all cases, results obtained using the FAST dataset are better than those obtained using other datasets. The CUT dataset performs slightly worse than the FAST dataset, while results obtained using RAW and WEEKS datasets are significantly worse than obtained using FAST and CUT datasets. This demonstrates that the use of fast measurement systems could better reflect the variability of the release even when it is located far from the release site and could better match the results of the IAEA dataset, which has a far better spatial distribution of the measurement stations.

4.4 Results using the FLEXPART model

In this section, we aim to demonstrate that a better time resolution of measurement is beneficial independently on the used atmospheric transport model and the used time-resolution. Concretely, we use the FLEXPART model (Pisso et al., 2019) in backward mode with a finer, 3 h output temporal resolution as described in Sect. 4.1.

We present results for considered location 2, Mayak, in Fig. 11. There are source terms estimated using the LS-APC

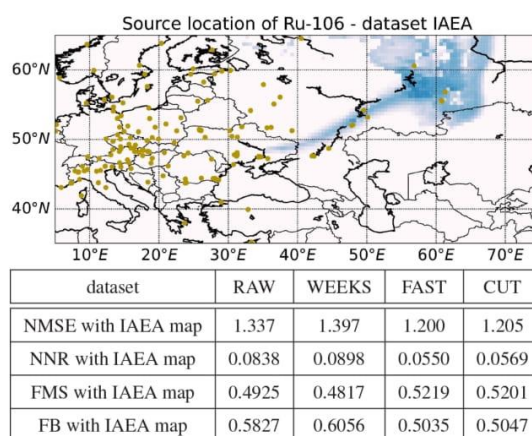


Figure 10. Top: source location of the release of ^{106}Ru via marginal log likelihood, using the IAEA dataset. Bottom: the computed normalized mean square error (NMSE), the normalized mean square error of the distribution of the normalized ratios (NNR), the figure of merit in space (FMS), and the fractional bias (FB) between the source location results obtained using the IAEA dataset and the RAW, WEEKS, FAST, and CUT datasets.

algorithm in the top row and a scatterplot between measured data reported by the IAEA and a reconstruction using each dataset in the bottom row. Note that the coloring of panels is the same as in Figs. 7 and 8. The totals of the source terms are 1388, 1459, 852, and 948 TBq for datasets RAW, WEEKS, FAST, and CUT respectively. The lengths of releases are 18, 24, 9, and 12 h for datasets RAW, WEEKS, FAST, and CUT respectively.

The following differences are observed in comparison with results based on HYSPLIT runs. First, we observe significant releases between 22 and 23 September in the case of the RAW and WEEKS datasets. These releases are not observed for the FAST and CUT datasets. However, note also that the response on this initial release in, e.g., the IAEA dataset is relatively low; see the comparison of R values in Fig. 11. Second, the release periods are estimated in the beginning of 25 September rather than in the end as in the case of the HYSPLIT runs; however, this difference is negligible considering the spatiotemporal domain. Third, totals of releases are in all cases significantly larger than in the case of the HYSPLIT runs. The reason for this disproportion may be in the different parametrization of the atmospheric model. Considering the scatterplots on the bottom of Fig. 11, we assume the estimated releases are slightly overestimated, while they are on the upper limit of estimates in the literature as in Table 2.

From this perspective, the better temporal resolution of the output temporal grid seems to better reflect the better temporal resolution of the measurements. Similarly to Sect. 4.3, we also validate (with the use of FLEXPART) the esti-

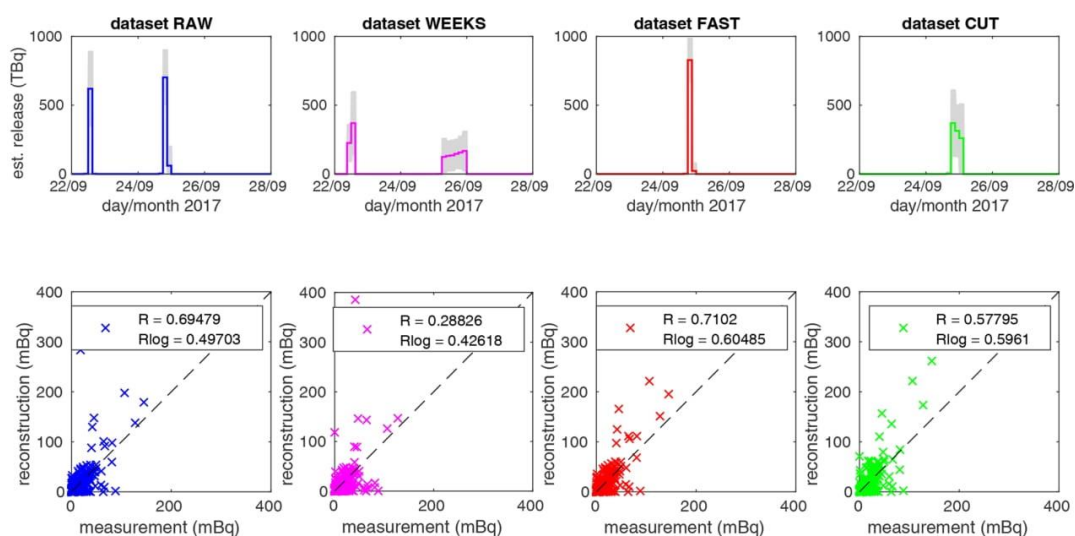


Figure 11. Estimated (est.) source terms for location 2, Mayak, using SRS matrices computed using the FLEXPART atmospheric transport model (top row) associated with scatterplots between the IAEA-reported measurements and reconstruction using specified dataset (bottom row). The coloring of panels is the same as in Figs. 7 and 8.

estimated source terms with the IAEA-reported measurements and compute the associated R value for each scatterplot in Fig. 11. The R value is slightly better for the FAST dataset (0.710) than for the RAW dataset (0.695), while it is 0.578 for the RAW dataset and even lower for the WEEKS dataset (0.288). These results support the hypothesis that better temporal resolution of measurements is beneficial for source term inversion.

5 Conclusions

We have investigated the occurrence of ^{106}Ru in Europe in the fall of 2017. We have used data from the Czech Radiation Monitoring Network, which also includes measurement data from novel real-time monitoring systems. Based on this case study, it can be concluded that both systems are suitable for the task of rapid detection of radioactive contamination in the atmosphere at the level of mBq m^{-3} . Each of the developed devices employs a different sampling–measurement procedure, and therefore there are also different possibilities for their integration into a large-scale monitoring network. The combination of the AMARA system and laboratory measurement seems to be an optimal setup, balancing response sensitivity and timeliness. On the other hand, the CEGAM system can be operated unattended in remote locations in a standby regime with a relatively low power consumption and can be switched to an emergency regime if needed. Regarding the employed electrically cooled HPGe detectors, they proved to be resilient enough to be deployed long term. For the past 3 years we have not experienced any malfunction or need of

excessive maintenance, so the only drawback of HPGe detectors is the accompanied costs compared to the NaI (TI) setup which we used in the past.

Using the inversion modeling technique, we have compared the results obtained from four datasets ranging from raw data, using the standard measuring procedure, to real-time monitoring data with a much better temporal resolution. The results have been compared with the published state-of-the-art estimates of the ^{106}Ru release in 2017. Based on this comparison, we have observed that the results obtained using real-time monitoring data are comparable in terms of the total estimated release and are better for the temporal specification of the release, and they are consistent with the previously reported findings regarding the location of the ^{106}Ru source term.

In addition, we have compared our results based on the Czech monitoring data with the dataset reported by the IAEA, which has a much better spatial coverage. The source location results have been compared using the NMSE, NNR, FMS, and FB coefficients between the IAEA results and the results based on the Czech monitoring data. We have concluded that the real-time monitoring data result is close to the IAEA result. Four source location hypotheses have been tested based on the correlation coefficient between the IAEA measurements and the model reconstruction using Czech monitoring data. Here, the results are in agreement with previous studies, with the Mayak location being the most probable ($R = 0.381$) in comparison with Dimitrovgrad ($R = 0.349$), southern Romania ($R = 0.139$), and the location to the north of Mayak ($R = 0.109$).

Concerning the real-time monitoring capabilities of the Czech Radiation Monitoring Network, we have shown that a single operating device can enhance the inverse modeling predictions even for a relatively low radionuclide concentration at the level of mBq m^{-3} . Although the continental-scale scenario such as the ^{106}Ru case in 2017 may not be ideal for quantification of a real-time monitoring system due to the diffusion over several days of transport, we believe that the benefits are still observable. It is safe to state that the installation of multiple devices such as AMARA and CEGAM over a larger region (on a European scale) would certainly yield additional improvements in source location and in source term estimation in the event of a radionuclide atmospheric release.

Code and data availability. The Czech datasets are freely available as the Supplement of this paper. The HYSPLIT and FLEXPART models are open source and are freely available from their developers. Reference MATLAB implementations of algorithms can be obtained from the corresponding author upon request.

Supplement. The supplement related to this article is available online at: <https://doi.org/10.5194/amt-14-803-2021-supplement>.

Author contributions. OT designed and performed the experiments and wrote the paper. MH designed experiments, conducted measurements, and wrote the paper. NE performed FLEXPART simulations and commented on the paper. VS commented on the paper and inversion procedure.

Competing interests. The authors declare that they have no conflict of interest.

Financial support. This research has been supported by the Czech Science Foundation (grant no. GA20-27939S) and the Ministry of the Interior of the Czech Republic (grant no. VI20152018042).

Review statement. This paper was edited by Ronald Cohen and reviewed by Daniel Lienhard and one anonymous referee.

References

- Abida, R. and Bocquet, M.: Targeting of observations for accidental atmospheric release monitoring, *Atmos. Environ.*, 43, 6312–6327, 2009.
- ACRO: Note Technique relative à l'incident du 31 octobre 2001 et aux retombées des incidents ruthénium survenus à Cogéma-La Hague en 2001, HEROUVILLE ST CLAIR, Report Number INIS-FR-08-1453, 17 pp., available at: https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:40007585 (last access: 25 May 2020), 2002 (in French).
- Berchet, A., Pison, I., Chevallier, F., Bousquet, P., Conil, S., Geever, M., Laurila, T., Lavrič, J., Lopez, M., Moncrieff, J., Necki, J., Ramonet, M., Schmidt, M., Steinbacher, M., and Tarniewicz, J.: Towards better error statistics for atmospheric inversions of methane surface fluxes, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 7115–7132, <https://doi.org/10.5194/acp-13-7115-2013>, 2013.
- Bernardo, J. and Smith, A.: Bayesian theory, vol. 405, John Wiley & Sons, Hoboken, USA, 2009.
- Bishop, C.: Pattern recognition and machine learning, Springer, New York, USA, 2006.
- Bossew, P., Gering, F., Petermann, E., Hamburger, T., Katzberger, C., Hernandez-Ceballos, M., De Cort, M., Gorzkiewicz, K., Kierepko, R., and Mietelski, J.: An episode of Ru-106 in air over Europe, September–October 2017 – Geographical distribution of inhalation dose over Europe, *J. Environ. Radioactiv.*, 205, 79–92, 2019.
- Brunner, D., Henne, S., Keller, C. A., Reimann, S., Vollmer, M. K., O'Doherty, S., and Maione, M.: An extended Kalman-filter for regional scale inverse emission estimation, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 3455–3478, <https://doi.org/10.5194/acp-12-3455-2012>, 2012.
- Carlton, W. and Denham, M.: Assessment of selected fission products in the Savannah River Site environment, Tech. rep., Westinghouse Savannah River Co., <https://doi.org/10.2172/554138>, 1997.
- Cassiani, M., Stohl, A., and Brioude, J.: Lagrangian stochastic modelling of dispersion in the convective boundary layer with skewed turbulence conditions and a vertical density gradient: Formulation and implementation in the FLEXPART model, *Bound.-Lay. Meteorol.*, 154, 367–390, 2015.
- Chang, J. and Hanna, S.: Air quality model performance evaluation, *Meteorol. Atmos. Phys.*, 87, 167–196, 2004.
- Chz, I.: Zpráva o radiační situaci na území ČSSR po havárii jaderné elektrárny Černobyl, Prague Institut hygieny a epidemiologie, Centrum hygieny záření, 1987 (in Czech).
- De Meutter, P. and Hoffman, I.: Bayesian source reconstruction of an anomalous Selenium-75 release at a nuclear research institute, *J. Environ. Radioactiv.*, 218, 106225, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106225>, 2020.
- De Meutter, P., Camps, J., Delcloo, A., and Termonia, P.: Source localisation and its uncertainty quantification after the third DPRK nuclear test, *Sci. Rep.-UK*, 8, 10155, <https://doi.org/10.1038/s41598-018-28403-z>, 2018.
- De Meutter, P., Camps, J., Delcloo, A., and Termonia, P.: Source Localization of Ruthenium-106 Detections in Autumn 2017 Using Inverse Modelling, in: Air Pollution Modeling and its Application XXVI. ITM 2018, edited by: Mensink, C., Gong, W., and Hakami, A., Springer Proceedings in Complexity, Springer, Cham, https://doi.org/10.1007/978-3-030-22055-6_15, 2020.
- Draxler, R. and Hess, G.: Description of the HYSPLIT_4 modeling system, NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224, Silver Spring, Maryland, USA, 1997.
- Eckhardt, S., Prata, A. J., Seibert, P., Stebel, K., and Stohl, A.: Estimation of the vertical profile of sulfur dioxide injection into the atmosphere by a volcanic eruption using satellite column measurements and inverse transport modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3881–3897, <https://doi.org/10.5194/acp-8-3881-2008>, 2008.

- Evangelidou, N., Hamburger, T., Cozic, A., Balkanski, Y., and Stohl, A.: Inverse modeling of the Chernobyl source term using atmospheric concentration and deposition measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 8805–8824, <https://doi.org/10.5194/acp-17-8805-2017>, 2017.
- Forster, C., Stohl, A., and Seibert, P.: Parameterization of convective transport in a Lagrangian particle dispersion model and its evaluation, *J. Appl. Meteorol. Clim.*, 46, 403–422, 2007.
- Grythe, H., Kristiansen, N. I., Groot Zwaftink, C. D., Eckhardt, S., Ström, J., Tunved, P., Krejci, R., and Stohl, A.: A new aerosol wet removal scheme for the Lagrangian particle model FLEXPART v10, *Geosci. Model Dev.*, 10, 1447–1466, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-1447-2017>, 2017.
- Henne, S., Brunner, D., Oney, B., Leuenberger, M., Eugster, W., Bamberger, I., Meinhardt, F., Steinbacher, M., and Emmenegger, L.: Validation of the Swiss methane emission inventory by atmospheric observations and inverse modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 3683–3710, <https://doi.org/10.5194/acp-16-3683-2016>, 2016.
- Hýža, M. and Rulík, P.: Low-level atmospheric radioactivity measurement using a NaI (TI) spectrometer during aerosol sampling, *Appl. Radiat. Isotopes*, 126, 225–227, 2017.
- IAEA: Updated Technical Attachment Status of Measurements of Ru-106 in Europe, Tech. rep., IAEA, Vienna, Austria, 2017.
- Kovalets, I. and Romanenko, A.: Detection of ruthenium-106 in 2017: meteorological analysis of the potential sources, research report, <https://doi.org/10.13140/RG.2.2.36537.67685>, 2017.
- Kristiansen, N., Stohl, A., Prata, A., Richter, A., Eckhardt, S., Seibert, P., Hoffmann, A., Ritter, C., Bitar, L., Duck, T., and Stebel, K.: Remote sensing and inverse transport modeling of the Kasatochi eruption sulfur dioxide cloud, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 115, 1984–2012, 2010.
- Le Brazidec, J., Bocquet, M., Saunier, O., and Roustan, Y.: MCMC methods applied to the reconstruction of the autumn 2017 Ruthenium-106 atmospheric contamination source, *Atmos. Environ.*, 6, 100071, <https://doi.org/10.1016/j.aeoa.2020.100071>, 2020.
- Liu, Y., Haussaire, J.-M., Bocquet, M., Roustan, Y., Saunier, O., and Mathieu, A.: Uncertainty quantification of pollutant source retrieval: comparison of Bayesian methods with application to the Chernobyl and Fukushima Daiichi accidental releases of radionuclides, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 143, 2886–2901, 2017.
- Maffezzoli, N., Baccolo, G., Di Stefano, E., and Clemenza, M.: The Ruthenium-106 plume over Europe in 2017: A source-receptor model to estimate the source region, *Atmos. Environ.*, 212, 239–249, 2019.
- Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., Carvalho, F. P., Connan, O., Cosma, C., Dalheimer, A., Didier, D., Depuydt, G., De Geer, L. E., De Vismes, A., Gini, L., Groppi, F., Gudnason, K., Gurriaran, R., Hainz, D., Halldórsson, Ó., Hammond, D., Hanley, O., Holeý, K., Homoki, Zs., Ioannidou, A., Isajenko, K., Jankovic, M., Katzlberger, C., Kettunen, M., Kierepko, R., Kontro, R., Kwakman, P. J. M., Lecomte, M., Leon Vintro, L., Leppänen, A.-P., Lind, B., Lujaniente, G., McGinnity, P., Mahon, C. M., Malá, H., Manenti, S., Manolopoulou, M., Mattila, A., Mairing, A., Mietelski, J. W., Møller, B., Nielsen, S. P., Nikolic, J., Overwater, R. M. W., Pálsson, S. E., Papastefanou, C., Penev, I., Pham, M. K., Povinec, P. P., Ramebäck, H., Reis, M. C., Ringer, W., Rodriguez, A., Rulík, P., Saey, P. R. J., Samsonov, V., Schlosser, C., Sgorbati, G., Silobritiene, B. V., Söderström, C., Sogni, R., Solier, L., Sonck, M., Steinhauser, G., Steinkopff, T., Steinmann, P., Stoulos, S., Sýkora, I., Todorovic, D., Tooloutalaie, N., Tositti, L., Tschiersch, J., Ugron, A., Vagena, E., Vargas, A., Wershofen, H., and Zhukova, O.: Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks, *Environ. Sci. Technol.*, 45, 7670–7677, 2011.
- Masson, O., Steinhauser, G., Wershofen, H., Mietelski, J. W., Fischer, H. W., Pourcelot, L., Saunier, O., Bieringer, J., Steinkopff, T., Hýža, M., Møller, B., Bowyer, T. W., Dalaka, E., Dalheimer, A., de Vismes-Ott, A., Eleftheriadis, K., Forte, M., Gasco Leonarte, C., Gorzkiewicz, K., Homoki, Z., Isajenko, K., Karhunen, T., Katzlberger, C., Kierepko, R., Kovendiné Kónyi, J., Malá, H., Nikolic, J., Povinec, P. P., Rajacic, M., Ringer, W., Rulík, P., Rusconi, R., Sáfrány, G., Sykora, I., Todorovic, D., Tschiersch, J., Ungar, K., and Zorko, B.: Potential Source Apportionment and Meteorological Conditions Involved in Airborne ¹³¹I Detections in January/February 2017 in Europe, *Environ. Sci. Technol.*, 52, 8488–8500, 2018.
- Masson, O., Steinhauser, G., Zok, D., Saunier, O., Angelov, H., Babić, D., Bečková, V., Bieringer, J., Bruggeman, M., Burbidge, C. I., Conil, S., Dalheimer, A., De Geer, L.-E., de Vismes Ott, A., Eleftheriadis, K., Estier, S., Fischer, H., Garavaglia, M. G., Gasco Leonarte, C., Gorzkiewicz, K., Hainz, D., Hoffman, I., Hýža, M., Isajenko, K., Karhunen, T., Kastlander, J., Katzlberger, C., Kierepko, R., Knetsch, G.-J., Kövendiné Kónyi, J., Lecomte, M., Mietelski, J. W., Min, P., Møller, B., Nielsen, S. P., Nikolic, J., Nikolovska, L., Penev, I., Petrinec, B., Povinec, P. P., Querfeld, R., Raimondi, O., Ransby, D., Ringer, W., Romanenko, O., Rusconi, R., Saey, P. R. J., Samsonov, V., Šilobritiene, B., Simion, E., Söderström, C., Šoštarić, M., Steinkopff, T., Steinmann, P., Sýkora, I., Tabachnyi, L., Todorovic, D., Tomankiewicz, E., Tschiersch, J., Tsiibranski, R., Tzortzis, M., Ungar, K., Vidic, A., Weller, A., Wershofen, H., Zagyvai, P., Zalewska, T., and Zapata García, D. and Zorko, B.: Airborne concentrations and chemical considerations of radioactive ruthenium from an undeclared major nuclear release in 2017, *P. Natl. Acad. Sci.*, 116, 16750–16759, 2019.
- Minty, B. and Hovgaard, J.: Reducing noise in gamma-ray spectrometry using spectral component analysis, *Explor. Geophys.*, 33, 172–176, 2002.
- Nikitina, O. and Slobodenyuk, I.: The French Newspaper Le Figaro Claims That a Possible Source of Emissions of Ruthenium Could Be Russian Mayak, Tech. rep., IBRAE, available at: <http://en.ibrae.ac.ru/newstext/889/> (last access: 25 May 2020), 2018.
- Nisbet, E. and Weiss, R.: Top-down versus bottom-up, *Science*, 328, 1241–1243, 2010.
- Pisso, I., Sollum, E., Grythe, H., Kristiansen, N. I., Cassiani, M., Eckhardt, S., Arnold, D., Morton, D., Thompson, R. L., Groot Zwaftink, C. D., Evangelidou, N., Sodemann, H., Haimberger, L., Henne, S., Brunner, D., Burkhart, J. F., Fouilloux, A., Brioude, J., Philipp, A., Seibert, P., and Stohl, A.: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 10.4, *Geosci. Model Dev.*, 12, 4955–4997, <https://doi.org/10.5194/gmd-12-4955-2019>, 2019.
- Polí, A. A. and Cirillo, M.: On the use of the normalized mean square error in evaluating dispersion model performance, *Atmos. Environ.*, 27, 2427–2434, 1993.

- Saunier, O., Didier, D., Mathieu, A., Masson, O., and Le Brazidec, J.: Atmospheric modeling and source reconstruction of radioactive ruthenium from an undeclared major release in 2017, *P. Natl. Acad. Sci.*, 116, 24991–25000, 2019.
- Seibert, P.: Inverse modelling with a Lagrangian particle dispersion model: application to point releases over limited time intervals, in: *Air Pollution Modeling and Its Application XIV*, edited by: Gryning, S. E. and Schiermeier, F. A., Springer, Boston, MA, USA, 381–389, https://doi.org/10.1007/0-306-47460-3_38, 2001.
- Seibert, P. and Frank, A.: Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 51–63, <https://doi.org/10.5194/acp-4-51-2004>, 2004.
- Shershakov, V., Borodin, R., and Tsaturov, Y.: Assessment of Possible Location Ru-106 Source in Russia in September–October 2017, *Russ. Meteorol. Hydrol.*, 44, 196–202, 2019.
- Šmídl, V. and Quinn, A.: *The Variational Bayes Method in Signal Processing*, Springer, Berlin, Heidelberg, Germany, 2006.
- Song, S., Selin, N. E., Soerensen, A. L., Angot, H., Artz, R., Brooks, S., Brunke, E.-G., Conley, G., Dommergue, A., Ebinghaus, R., Holsen, T. M., Jaffe, D. A., Kang, S., Kelley, P., Luke, W. T., Magand, O., Marumoto, K., Pfaffhuber, K. A., Ren, X., Sheu, G.-R., Slemr, F., Warneke, T., Weigelt, A., Weiss-Penzias, P., Wip, D. C., and Zhang, Q.: Top-down constraints on atmospheric mercury emissions and implications for global biogeochemical cycling, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 7103–7125, <https://doi.org/10.5194/acp-15-7103-2015>, 2015.
- Sørensen, J.: Method for source localization proposed and applied to the October 2017 case of atmospheric dispersion of Ru-106, *J. Environ. Radioactiv.*, 189, 221–226, 2018.
- Stein, A., Draxler, R., Rolph, G., Stunder, B., Cohen, M., and Ngan, F.: NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 96, 2059–2077, 2015.
- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461–2474, <https://doi.org/10.5194/acp-5-2461-2005>, 2005.
- Stohl, A., Seibert, P., Arduini, J., Eckhardt, S., Fraser, P., Grelally, B. R., Lunder, C., Maione, M., Mühle, J., O'Doherty, S., Prinn, R. G., Reimann, S., Saito, T., Schmidbauer, N., Simmonds, P. G., Vollmer, M. K., Weiss, R. F., and Yokouchi, Y.: An analytical inversion method for determining regional and global emissions of greenhouse gases: Sensitivity studies and application to halocarbons, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1597–1620, <https://doi.org/10.5194/acp-9-1597-2009>, 2009.
- Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, D., Burkhardt, J. F., Eckhardt, S., Tapia, C., Vargas, A., and Yasunari, T. J.: Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2313–2343, <https://doi.org/10.5194/acp-12-2313-2012>, 2012.
- Takiar, V., Voong, K., Gombos, D., Mourtada, F., Rechner, L., Lawyer, A., Morrison, W., Garden, A., and Beadle, B.: A choice of radionuclide: Comparative outcomes and toxicity of ruthenium-106 and iodine-125 in the definitive treatment of uveal melanoma, *Practical Radiation Oncology*, 5, 169–176, 2015.
- Tcherkezian, V., Galushkin, B., Goryachenkova, T., Kashkarov, L., Liul, A., Roschina, I., and Rumiantsev, O.: Forms of contamination of the environment by radionuclides after the Tomsk accident (Russia, 1993), *J. Environ. Radioactiv.*, 27, 133–139, 1995.
- Tichý, O., Šmídl, V., Hofman, R., and Stohl, A.: LS-APC v1.0: a tuning-free method for the linear inverse problem and its application to source-term determination, *Geosci. Model Dev.*, 9, 4297–4311, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-4297-2016>, 2016.
- Tichý, O., Šmídl, V., Hofman, R., Šindelářová, K., Hýža, M., and Stohl, A.: Bayesian inverse modeling and source location of an unintended ^{131}I release in Europe in the fall of 2011, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 12677–12696, <https://doi.org/10.5194/acp-17-12677-2017>, 2017.
- Tichý, O., Ulrych, L., Šmídl, V., Evangelidou, N., and Stohl, A.: On the tuning of atmospheric inverse methods: comparisons with the European Tracer Experiment (ETEX) and Chernobyl datasets using the atmospheric transport model FLEXPART, *Geosci. Model Dev.*, 13, 5917–5934, <https://doi.org/10.5194/gmd-13-5917-2020>, 2020.
- Tipping, M. and Bishop, C.: Probabilistic principal component analysis, *J. R. Stat. Soc.*, 61, 611–622, 1999.
- UNSCEAR: Sources and effects of ionizing radiation: sources, United Nations Publications, New York, USA, 2000.
- Western, L., Millington, S., Benfield-Dexter, A., and Witham, C.: Source estimation of an unexpected release of Ruthenium-106 in 2017 using an inverse modelling approach, *J. Environ. Radioactiv.*, 220, 106304, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106304>, 2020.

OPTIMIZATION OF THE RADIOACTIVE AEROSOL SAMPLING AND MEASURING PROCEDURE WITH RESPECT TO RADON CONCENTRATION IN THE AIR

Miroslav Hýža^{1,*}, Petr Rulík¹ and Vojtěch Bednář²

¹National Radiation Protection Institute, Bartoškova 28, 140 00 Prague, Czech Republic

²NUVIA a.s., Modřínová 1094, 674 01 Třebíč, Třebíč, Czech Republic

*Corresponding author: miroslav.hyza@suro.cz

High-volume aerosol samplers combined with laboratory analysis using high-resolution gamma ray spectrometry allow determining artificial radionuclides in the atmosphere at sub $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ levels. A major drawback of this procedure is a significant delay of the analysis result after any potential radioactive contamination deposition on the aerosol filter. Within the scope of the HAMRAD project, an autonomous device was developed in order to increase the sampling and measuring frequency. This approach yields higher detection limits (minimum detectable activity concentration [MDAC]) due to the deposited activity of radon decay products on the filter. In order to quantify the radon effect, a simple mathematical model was developed to predict MDAC for the particular radionuclide of interest for the given background conditions. It was found that MDAC can vary by a factor of ~ 2 for typical 'radon' conditions ($\sim 10 \text{ Bq}/\text{m}^3$) at SÚRO Prague and by a factor up to 5 for high radon concentration ($100 \text{ Bq}/\text{m}^3$).

INTRODUCTION

The Chernobyl accident in 1986 led to a significant development of national radiation monitoring networks (RMNs) oriented on monitoring artificial radionuclides in the environment. The key components of RMNs are the sites equipped with high-volume aerosol samplers designated for atmospheric radioactivity monitoring. The standard procedure consists of the sampling stage which takes several days up to 1 week followed by a laboratory analysis of the filters using gamma ray spectrometry and, in some cases, also by a radiochemical analysis followed by alpha and beta emitters. As today's sampling devices easily reach a flow rate of up to $1000 \text{ m}^3/\text{h}$, the resulting detection limits (minimum detectable activity concentration [MDAC]) can be as low as $0.1 \text{ Bq}/\text{m}^3$ for 1 week of sampling and multiday measurement with a high efficiency HPGe spectrometer.

The price paid for these ultra-low MDACs is a significant time lag between the potential contamination deposition on the filter and its detection in the laboratory. Although the sampling intervals could be shortened, experience proved that it is very difficult to maintain the sampling frequency higher than one sample per 24 hours, mainly due to logistic difficulties. Therefore, it is very convenient to operate some kind of automatic monitoring devices which is an increasingly popular choice among monitoring organizations^(1, 2).

Although there are already some commercial solutions available, the National Radiation Protection Institute (SÚRO) and NUVIA company (within the scope of the project No. VI20152018042, acronym HAMRAD) developed a unique autonomous device able to take and analyze aerosol samples in user-specified time intervals. HAMRAD is equipped with a low volume pump with adjustable flow rate ($\sim 10 \text{ m}^3/\text{h}$) and a measuring unit consisting of an electrically cooled 40% HPGe detector in lead shielding. The principle of operation is based on a four-position carousel moving the filter between storage bins, sampling and measuring positions. After the spectrometric analysis is done, the results together with spectral data are sent to the central server where they can be accessed by the user. The user interface also allows remote setting of sampling and analysis parameters.

As this device can easily run with much higher sampling frequencies, the time lag of alert reporting could be significantly reduced. Unfortunately, this is at the expense of detection limits, which are significantly higher due to the shorter measurement time and a higher level of natural background caused by the residual activity of radon and thoron progenies (RP and TP) on the filter.

As the radon (Rn) concentration in outdoor air varies considerably even at hourly timescale, it is necessary to investigate the effect of changing natural background on the MDACs. The aim of this study was to develop a mathematical model which would

allow predicting MDACs for the radionuclides of interest based solely on the Rn activity concentration in the air and the parameters of sampling/measurement.

METHODS

Rn time series

For modeling purposes, many synthetic i.e. artificially created time series of Rn concentration in the air were created. Moreover, in order to achieve a more realistic input, data from the online monitoring station⁽³⁾ at SÚRO in 2017 was employed.

The average Rn concentration at this site is ~ 10 Bq/m³ and roughly 10 times lower than thoron (Tn) concentration. As the Tn concentration in the air is below the online station detection limits, Tn time series was estimated based on the Rn series assuming that the variability during the day/year would be similar, only with concentrations ~ 10 times lower. Maximum Rn activity concentrations reach 100 Bq/m³. Daily maximums are usually observed between 5 and 7 am and minimums at about 3 pm. This is because Rn activity in the atmosphere is heavily influenced by atmospheric stability (temperature gradient and wind speed).

As the model input requires DP and TP concentrations rather than Rn and Tn concentrations, their time series were estimated using various sets of disequilibrium factors between Rn/Tn and RP/TP. For the purpose of MDAC variability prediction, RP and TP concentration ratios were estimated based on their outdoor mean concentration, as reported in⁽³⁾. In addition, several model runs were performed based on the progenies ratios estimated experimentally.

Detector calibration

The efficiency calibration of the HPGe detector was performed using a set of standards prepared by spiking glass fiber filters with standard solutions provided by the Czech Metrological Institute. Radionuclides used for the calibration were ²¹⁰Pb, ²⁴¹Am, ¹⁰⁹Cd, ¹⁵²Eu, ¹³⁷Cs, ⁸⁸Y and ⁶⁰Co, covering the energy range between 50 and 2000 keV. The multiline radionuclides were corrected for cascade summing effect by the EFFTRAN software⁽⁵⁾.

Buildup and decay modeling

The time series of Rn and Tn in the air itself tells us very little about the level of MDAC. Rather, it is desirable to know the residual activity present on the filter during measurement. Therefore, the problem needs to be tackled in a more complex manner. As the main contribution to the MDAC deterioration comes from the gamma emitting Rn and Tn progenies ²¹²Pb,

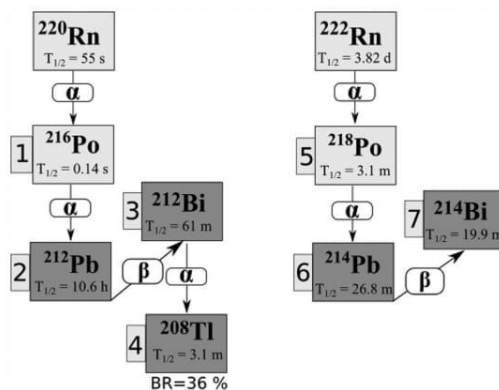


Figure 1. Radon (²²²Rn) and thoron (²²⁰Rn) decay chain segments relevant for the MDAC modeling.

²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²¹²Bi and ²⁰⁸Tl, it is sufficient to study their deposition dynamics excluding the rest of the decay chain (Figure 1).

In the end, the activity deposition was described by a set of ordinary differential equations (ODEs):

$$\frac{d}{dt} N_i(t) = D_i(t) - \lambda_i \times N_i(t) + B_i(t) \quad (1)$$

$$N_i(0) = 0 \forall i \in \{1, 2, \dots, 7\} \quad (2)$$

$$D_i(t) = V(t) \times F_i(t) \times C(t) \times \lambda_i^{-1} \quad (3)$$

where N_i is the number of deposited radioactive atoms of the i -th radionuclide (numbered as in Figure 1), λ_i its decay constant, B_i describes the contribution of activity from the preceding levels in the decay chain, F_i characterizes the ratio between Rn and the i -th radionuclide concentration in the outdoor air, V is the device flow rate and C stands for the Rn activity concentration in the outdoor air. All parameters are treated as time-dependent quantities which allow studying the deposition dynamics more realistically. The $V(t)$ function is zero valued for $t > t_s$, where t_s denotes the sampling end time.

Numerical integration of this ODE system was done using the *deSolve* package⁽⁶⁾ in R⁽⁷⁾ using the classical Runge–Kutta method.

Predictive model for the MDAC estimation

Since the impulse detection can be modeled as a Poisson process, MDAC can be considered directly proportional to the background variability described by its standard deviation σ_B . In the scope of gamma ray spectrometry, background is the total number of counts in a particular region of the spectrum where we would expect to observe a peak of a particular

artificial radionuclide. Besides the cosmogenic contribution and contribution of natural radionuclides in the construction material, the background is heavily influenced by the residual RP and TP activity on the filter during the measurement. Combining the above mentioned, the MDAC for a certain radionuclide can be estimated as:

$$MDAC \propto \sigma_B \propto \sqrt{B} \propto \sqrt{\int_0^{t_m} A(t) dt} \quad (4)$$

where B is the count sum of a particular region of interest (ROI) in the given spectrum and $A(t)$ is the total deposited activity of RP and TP and t_m is the measurement length.

Since the half-lives of TP are significantly longer than of RP, their deposition dynamics would also differ significantly. Their relative contribution to the given ROI would vary as well, since RP also emit strong gamma photons with energy above 1 MeV. It is therefore reasonable to consider them separately. In addition, based on Poisson counting statistics, it can be concluded that MDAC will be inversely proportional to the square root of the measurement length. This reasoning yields the simple MDAC model in the form:

$$MDAC(t_m) \sim \alpha \times G_1(t_m) + \beta \times G_2(t_m) + \gamma \times \frac{1}{\sqrt{t_m}} \quad (5)$$

$$G_1(t_m) = \sqrt{\int_0^{t_m} (A_6(t) + A_7(t)) dt} \quad (6)$$

$$G_2(t_m) = \sqrt{\int_0^{t_m} (A_2(t) + A_3(t) + A_4(t)) dt} \quad (7)$$

where A_i denotes the activity of the i -th radionuclide numbered as in the Figure 1. This model was fitted to the experimental data consisting of measurements with different parameters of sampling. For each analyzed spectrum, the $A_i(0)$ and MDAC for the radionuclide of interest were calculated.

Decay correction was performed for all radionuclides. In addition, the i correction accounting for the progenies in growth during the measurement was applied. The activity of each daughter radionuclide is therefore the sum of the primarily deposited and ingrowth components.

The developed linear model fits the data reasonably well (see Figure 2) for all considered artificial radionuclides. Adjusted regression coefficients R^2 were found to be in the range 0.90–0.95, and all regression coefficients proved to be statistically significant with P -values < 0.01 .

RESULTS AND DISCUSSION

MDACs for the selected radionuclides were estimated for the given Rn concentration and given sampling/measuring parameters. ^{131}I and ^{137}Cs were chosen as representative radionuclides as they are expected in the atmosphere after a nuclear reactor

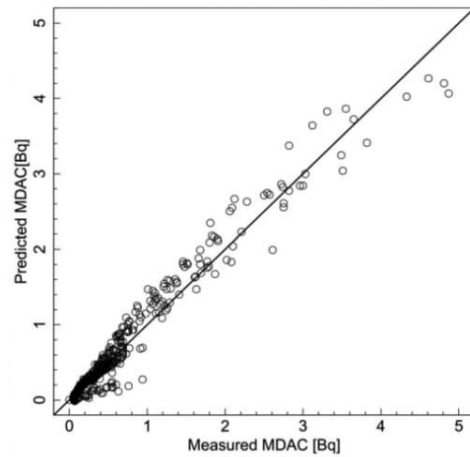


Figure 2. Experimentally derived MDAC and modeled MDAC for the measurement durations of 4, 8 and 12 hours and for the radionuclides: ^{131}I , ^{137}Cs and ^{241}Am .

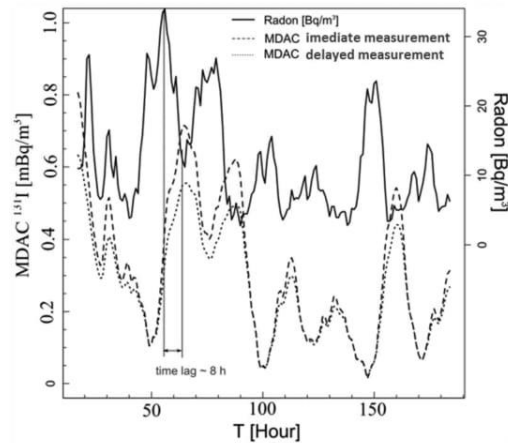


Figure 3. Example of predicted ^{131}I MDAC for model parameters F_i determined experimentally at Prague location (single measurement): $F_1 = 0.1$, $F_2 = 0.01$, $F_3 = 0.02$, $F_4 = 0.007$, $F_5 = 1$, $F_6 = 0.42$, $F_7 = 0.42$, sampling/measurement duration = 8 hours.

accident. ^{241}Am was selected for its low energy photons and thus a less sensitive detection in general. To quantify the influence of the Rn conditions on the MDACs, various real and hypothetical scenarios were analyzed. The prediction model shows that the MDAC levels are mostly (but not entirely) affected by the RP in air at the end of sampling. This means that the MDAC time series follows a similar trend as the Rn concentration in the air but with a time lag roughly corresponding to the sampling duration, as illustrated in the model output example in Figure 3.

Table 1. Estimated MDAC variability at SÚRO Prague (delayed measurement, F_j factors based on⁽³⁾)

MDAC	Interquartile range (mBq/m ³)		
	¹³¹ I	¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am
Sampling, hours			
4	1.9–2.5	1.7–2.5	10.0–13.5
8	0.4–0.7	0.1–0.4	1.9–3.7
12	0.2–0.4	0.1–0.2	1.0–2.0

Quantitatively, it can be concluded that Rn diurnal variations can increase the MDAC by a factor of ~2 for an 8-hour measurement and typical Rn concentration (~10 Bq/m³). In case of significantly enhanced Rn background (~100 Bq/m³), the increase can be as high as 5-fold.

The prediction model also allows us to calculate the optimal delay time between the end of sampling and the start of the measurement. As the residual activities of RP and TP decay with significantly different half-lives, the main effect is caused by the rapidly decaying Rn component. Optimal measurement delay is found to be several minutes to 2 hours, depending on the overall measurement length and deposited activity. Even for a fixed measurement length, the value of delay can vary significantly.

The effect of delayed measurement on MDAC is moderate for typical conditions where the MDAC reduction factor is typically close to 1.25. On the other hand, for high Rn background, it can be significant and easily reach values of 2–3. Expected MDAC variability for different sampling lengths is summarized in Table 1.

Although this modeling approach is an excellent tool for an optimization analysis, the calculation of the optimal measurement delay time is computationally challenging, and the model input in the form of Rn time series is not always available. Therefore, a simpler procedure was employed.

In this approach, the spectrum acquisition is performed in a sequential regime (the spectrum is continuously acquired from the moment the aerosol filter is moved under the detector and it is stored at the pre-selected times). As a result, a set of partial summation spectra S_i is created. From each partial spectrum, the preceding spectrum S_j is subtracted (for all j), and differential spectrum ($S_i - S_j$) is analyzed by standard methods. The optimal 'cutoff' is then chosen based on the monitored radionuclide activity uncertainty or its

MDAC as follows:

$$\text{MDAC}_i = \underset{j < i}{\text{argmin}} \left\{ \text{MDAC} (S_i - S_j) \right\} \quad (8)$$

In each step, the full spectrum analysis is done, so the current and progressively more sensitive evaluation of the spectrum is reported. Thus, the reporting delay is given effectively just by the sampling length.

CONCLUSION

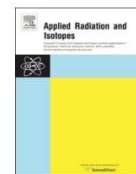
Modeling approach proved to be a useful tool for studying the effects of variable natural background on the aerosol measurement MDACs. As Rn conditions greatly influence the sensitivity, it is recommended to carefully set up the monitoring regime in order to minimize this influence. The right choice of sampling interval (with limit points avoiding daily Rn maxima) and optimal measurement delay is essential in order to achieve low detection limits. Failing to do so, the detection limits can be up to five times higher.

FUNDING

This work was supported by the VI20152018042 project funded by the Ministry of the Interior of the Czech Republic.

REFERENCES

1. Casanovas, R. *et al.* Development and calibration of a real-time airborne radioactivity monitor using gamma-ray spectrometry on a particulate filter. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **61**(2), 727–731 (2014).
2. Forrester, J. *et al.* Engineering upgrades to the radionuclide aerosol sampler/analyser for the CTBT international monitoring system. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **296**, 1055–1060 (2013).
3. L'Annunziata, M. (Ed.), *Handbook of Radioactivity Analysis, Chapter 11 – Radioactive Aerosol Analysis* (Elsevier Science) (2012) ISBN 9780123848734.
4. Jilek, K. *et al.* The NRPI multi-purpose on-line monitoring station for measurement of natural radioactivity in the ambient atmosphere and in the soil. *Radiat. Prot. Dosim.* **177**(1–2), 57–62 (2017).
5. Vidmar, T. *EFFTRAN - a Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry.* *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **550**, 603–608 (2005).
6. Soetaert, K. *et al.* Solving differential equations in R: package deSolve. *J. Stat. Softw.* **33**(9), 1–25 (2010).
7. R Core Team. *R: A Language and Environment for Statistical Computing.* (Vienna, Austria: R Foundation for Statistical Computing) (2012) ISBN 3-900051-07-0.



Low-level atmospheric radioactivity measurement using a NaI(Tl) spectrometer during aerosol sampling



Miroslav Hýža*, Petr Rulík

National Protection Institute (SÚRO), Bartoškova 28, 140 00 Prague, Czechia

ARTICLE INFO

Keywords:

Radioactive aerosol
Gamma spectrometry
Spectrum analysis
Real time
Atmosphere

ABSTRACT

In order to increase the early warning ability of the radiation monitoring network of the Czech republic, a high-volume aerosol sampler was upgraded with a NaI(Tl) probe placed directly above the aerosol filter. The paper demonstrates the possibility of using a method based on principal component regression to accurately subtract the complicated natural background caused by radon decay products. This approach yielded minimum detectable activities of 8 mBq/m³, 3 mBq/m³ and 7 mBq/m³ for ¹³¹I, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs, respectively, after 24 h of sampling.

1. Introduction

An early detection of elevated anthropogenic radionuclide concentrations in the air is a key aspect of environmental radiological monitoring. Although it is possible to achieve detection limits as low as tenths of μBq/m³ (¹³⁷Cs) in a well-equipped laboratory, it is at the expense of time resolution. For this reason, a high volume (HVOL) aerosol sampler has been upgraded with a real time NaI(Tl) spectrometric module located directly above the aerosol filter.

The main problem with real time aerosol measurements is the natural gamma ray background caused mainly by the short-lived ²²²Rn and ²²⁰Rn decay products (RDPs). This is problematic not only due to their high deposited activity (approx. tens of kBq), but also due to their high variability.

Nuclide specific information is usually obtained from a gamma ray spectrum by peak search algorithms. These algorithms are typically based on a spectrum derivative, such as the popular method developed by Mariscotti (1967). However, for aerosol real-time measurements using a NaI(Tl) probe, these algorithms are not sensitive enough, especially to the radionuclides interfering with the natural background, such as ¹³¹I (364 keV interfering with 352 keV emitted by ²¹⁴Pb).

That is why another method based on the full multi-channel spectrum analysis was investigated. This approach is well known in the field of airborne gamma ray spectrometry (Minty and Hovgaard, 2002) and consists in the extraction of the characteristic spectral shapes from a large dataset of background measurements (training set). Essentially, this method belongs to the family of principal component regression (PCR) techniques (Cheng and Iglarsh, 1976) where the background spectral shapes are derived directly from the training set.

The singular value decomposition method (SVD) (Eckart and Young, 1936) is an excellent tool to achieve this goal.

2. Methods

2.1. Hardware

The basic configuration of the experimental arrangement consists of the spectrometric module equipped with a 3" x 3" NaI(Tl) scintillation probe placed 5 cm above the aerosol filter of the JL 900 (Senya, Finland, throughput 900 m³/h) sampler. The spectrometer with an energy resolution of 9% (662 keV) is mounted in a temperature controlled aluminum case with high voltage and amplifier gain set approximately to 1.5 keV/channel (2048 channels).

2.2. Detection Algorithm

Natural background subtraction is accomplished by the classical Gauss–Markov linear regression model with the design matrix $D_{n \times (r+p)}$ which can be viewed as a block matrix consisting of two submatrices: $U_{n \times r}$ and $A_{n \times p}$. The $U_{n \times r}$ matrix consists of the first r columns of the model design matrix and contains natural spectral components. The remaining p columns of $D_{n \times (r+p)}$ form the second submatrix $A_{n \times p}$ representing anthropogenic spectral components (each of length $n = 2048$ channels).

The anthropogenic components stored in $A_{n \times p}$ were obtained using the Monte Carlo (MC) simulation (X-5 Monte Carlo Team, 2003) of the detector response to the radionuclides of interest (¹³⁷Cs, ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³²I, ¹³²Te). Validation of the MC simulation was performed using a

* Corresponding author.

E-mail address: miroslav.hyza@suro.cz (M. Hýža).

<http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.12.046>

Received 15 August 2016; Received in revised form 16 December 2016; Accepted 21 December 2016

Available online 22 December 2016

0969-8043/© 2016 Elsevier Ltd. All rights reserved.

filter material spiked with ^{137}Cs and ^{152}Eu .

On the other hand, natural components stored in $U_{n \times r}$ were obtained directly from the training matrix $B_{n \times m}$ whose columns contain channel content of the individual experimental background spectra. This was achieved using a SVD factorization of the form

$$B = UWV^T$$

Where $U_{n \times \min(n,m)}$ and $V_{m \times \min(n,m)}$ are unitary matrices and $W_{n \times n}$ is a diagonal matrix with real diagonal elements σ_i such that $\sigma_1 \geq \sigma_2 \geq \dots \geq \sigma_{\min(n,m)} \geq 0$.

The columns of the matrix $U_{n \times r}$ represent desired natural spectral components used for linear regression. Since the components associated with the largest singular values explain most of the spectrum variance, we can discard all but first r columns of U to get acceptable description of any background spectrum.

Numerical computation is usually realized by an iterative decomposition of the matrix B reduced to a bidiagonal form. In this work, the popular Golub-Reinsch algorithm (Golub and Reinsch, 1970) implemented in LAPACK routine xGESVD (Anderson et al., 1999) was adopted. It allows a considerably large matrix ($n=2048$, $m=3000$) decomposition in a reasonable time (few seconds on a 3.3 GHz Intel i5 CPU). Statistical calculations and visualizations were carried out using the R language (R Core Team, 2016).

In airborne gamma ray spectrometry, the performance of the SVD can be improved by considering the Poisson varying noise in the input spectrum S (NASVD method). With this in mind, we adopted simple method developed originally by Hovgaard (1997) in order to explore the utility of the NASVD in the context of the real time aerosol measurement. This method estimates variance in each channel of the input spectrum using the mean spectrum S_{mean} . First, S is approximated in the ordinary least squares sense (OLS) by the S_{mean}

$$S \sim k \times S_{mean}$$

Second, the i th channel of the adjusted spectrum S_{adj} is calculated as

$$S_{adj}[i] = \frac{S_i[i]}{\sqrt{k \times S_{mean}[i]}}$$

After this noise adjustment, the NASVD procedure is analogous to a simple SVD.

Further improvement is sometimes possible by classifying the background and measured spectra into several categories based on spectral shape similarity (clustering). Now, the only change is that the natural spectral components (matrix $U_{n \times r}$) are constructed for each class separately. In this study, the selection of categories was based upon the RDP deposited activity ratios ($^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$, $^{214}\text{Pb}/^{212}\text{Pb}$ and $^{212}\text{Pb}/^{208}\text{Tl}$). This way of classification reflects the changing concentration of RDPs on the filter due to the diurnal variation in the atmosphere and different buildup rate during sampling. For our experimental setup, this approach yielded slightly better results than unsupervised clustering algorithms (e.g. K-means).

The full analysis procedure can be described as follows:

- 1) Monte Carlo simulation of detector response to the radionuclides of interest- creation of matrix $A_{n \times p}$
- 2) Noise adjustment (for NASVD only) and classification (for clustered variant only) of the input spectrum S and training matrix $B_{n \times m}$
- 3) SVD factorization of the training matrix $B = UWV^T$
- 4) Construction of the design matrix $D = (U_{n \times r} | A_{n \times p})$

The analyzed spectrum is then described by a linear model $S = D\beta + \epsilon$, where β denotes the unknown parameter vector of regression coefficients and ϵ denotes the vector of random errors.

5) OLS estimation of β

6) Alarm initiation.

Let the $\gamma = (\beta_{r+1}, \beta_{r+2}, \dots, \beta_{r+p})$ be a vector indicating the contribution

of the radionuclides in question to the analyzed spectrum. The alarm is initiated when $\gamma_i > \text{decision threshold}_i$

2.2.1. Estimation of the algorithm efficiency

In order to verify the validity and estimate the efficiency of the developed algorithm, we have carried out a series of experiments with radiation sources. Since the radionuclides of primary interest are those which are expected in the air after a nuclear power plant accident, radiation sources of ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{131}I were utilized. Placing these sources on the filter during sampling for varying periods of time simulated different amounts of deposited activity on the filter. Unfortunately, for practical reasons it was not possible to cover a wide range of changing background with measurement. That is why the MC simulation was applied again.

Approximately 1000 background spectra which were originally not used for the U matrix calculation were injected with artificial counts corresponding to the desired activity of the anthropogenic radionuclide. The injection was performed by random sampling of the counts from the probability density function represented by the particular simulated anthropogenic spectrum. In the end, the sampled and background spectra were simply summed channel-wise.

Both the “clean” and injected spectra were then analyzed by the detection algorithm described above. An example of the injected spectra analysis is illustrated in Fig. 1. Based on the statistical analysis of the results, variance of the background and signal was assessed which allowed to calculate MDAs based on the Currie (1968) approach.

3. Results and discussion

Using the NASVD algorithm, the MDA level of 8 mBq/m³, 3 mBq/m³ and 7 mBq/m³ for ^{131}I , ^{134}Cs and ^{137}Cs in the air after 24 h of sampling was achieved. Expressed in the absolute deposited activity, MDA ranges approximately between 100 Bq/filter to 200 Bq/filter for ^{131}I , ^{134}Cs and ^{137}Cs as indicated in Table 1.

Based on the algorithm efficiency analysis, a simple SVD factorization yields approximately the same MDAs as the noise-adjusted variant NASVD even with spectra clustering. It can be concluded that for our application, the simple SVD provides a reliable estimation of the background.

All analyses were carried out using the first 10 spectral components. Based on a series of cross validation analyses, it emerged that ranks higher than 10 do not yield any further MDA reduction. In addition, the described method turned out to be robust with respect to the seasonal variation of atmospheric radioactivity, i.e. the spectral shapes derived from the background measurement in summer can be quite reliably used for background subtraction in winter and vice versa.

4. Conclusion

Although the described upgrade of the sampling device consists in a simple modification without any fundamental changes in the sampler design or operation procedure, it produced reasonably low detection limits, even for the NaI(Tl) spectrometer with a poor energy resolution.

The full multichannel spectrum analysis using PCR-based techniques proves to be an effective way to improve the detection sensitivity in the presence of a very high and fluctuating background.

One of the main features of this method is that its sensitivity gradually improves as the number of measured background spectra increases. The only drawback is that the deposited artificial radioactivity needs to be determined using an independent method to ensure that the measured spectra contain background signal only.

Acknowledgements

This work was supported by the “MOSTAR” project, identification code VG20132015119, funded by the Ministry of the Interior of the

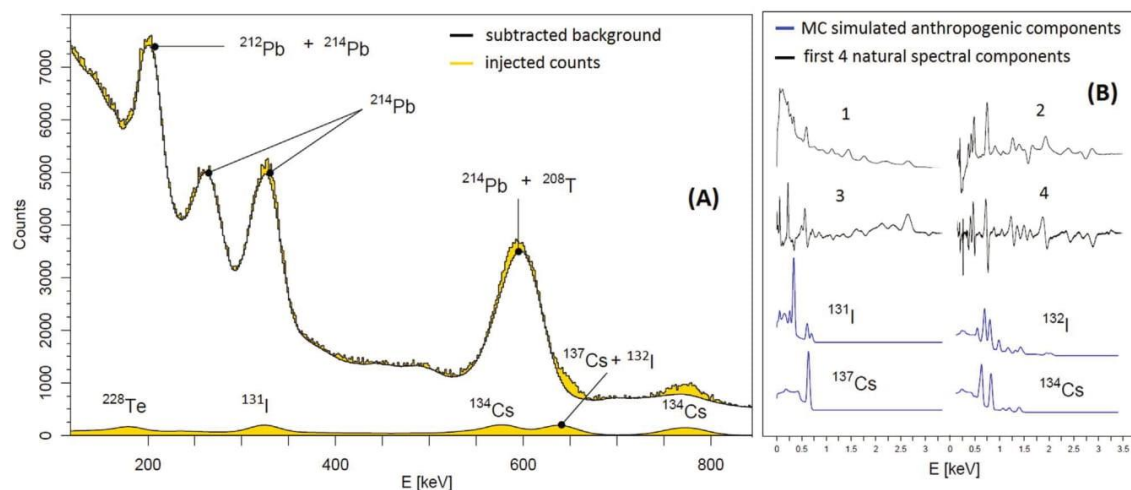


Fig. 1. (A) – Example of injected spectra analysis with the added activity of 220 Bq/filter of each of the radionuclides of interest. (B) – Natural and anthropogenic spectral components used for the regression.

Table 1

MDA value estimations for different PCR approaches (Currie, 1968, $\alpha = \beta = 0.01$).

Method	MDA [Bq/filter]		
	^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs
SVD	195	75	160
Clustered SVD	176	68	150
NASVD	190	75	145
Clustered NASVD	177	67	145

Czech Republic.

References

- Anderson, E., Bai, Z., Bischof, C., Blackford, S., Demmel, J., Dongarra, J., Sorensen, D., 1999. LAPACK Users' Guide (Third). Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia.
- Currie, L.A., 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Appl. Radiochem. Anal. Chem. 40 (3), 586–593. <http://dx.doi.org/10.1021/ac60259a007>.
- Eckart, C., Young, G., 1936. The approximation of one matrix by another of lower rank. Psychometrika 1 (3), 211–218. <http://dx.doi.org/10.1007/BF02288367>.
- Golub, G.H., Reinsch, C., 1970. Singular value decomposition and least squares solutions. Numer. Math. 14, 403–420. <http://dx.doi.org/10.1007/BF02163027>.
- Hovgaard, J., 1997. A new processing technique for airborne gamma-ray data – DTU Orbit. In: Proceedings of the Sixth Topical Meeting on Emergency Preparedness & Response. American Nuclear Society, San Francisco. Retrieved from [http://orbit.dtu.dk/en/publications/a-new-processing-technique-for-airborne-gammaray-data\(17d98033-c4b0-4424-be62-e6186eaf42ab\).html](http://orbit.dtu.dk/en/publications/a-new-processing-technique-for-airborne-gammaray-data(17d98033-c4b0-4424-be62-e6186eaf42ab).html).
- Cheng, D.C., Iglarsh, H.J., 1976. Principal component estimators in regression analysis. Rev. Econ. Stat. 58 (2), 229. <http://dx.doi.org/10.2307/1924030>.
- Mariscotti, M.A., 1967. A method for automatic identification of peaks in the presence of background and its application to spectrum analysis. Nucl. Instrum. Methods 50 (2), 309–320. [http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X\(67\)90058-4](http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X(67)90058-4).
- Minty, B., Hovgaard, J., 2002. Reducing noise in gamma-ray spectrometry using spectral component analysis. Explor. Geophys. 33 (3), 172–176.
- R Core Team, 2016. R: A Language and Environment for Statistical Computing. Vienna: R Foundation for Statistical Computing. Retrieved from <http://www.r-project.org>.
- X-5 Monte Carlo Team, 2003. MCNP – Version 5, Vol. I: Overview and Theory, LA-UR-03-1987.