



UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI
FAKULTET
DEPARTMAN ZA FIZIKU



Ljubica Đozlija

Određivanje ^{226}Ra u vodi detekcijom Čerenkovljevog zračenja

-Diplomski rad-

Mentor

Prof. dr Nataša Todorović

Prof. dr Ivana Stojković

Novi Sad, 2021.

Sadržaj

1.	Uvod	1
2.	Beta raspad	2
	Vrste beta raspada i energijski uslovi	2
	Energijski spektar beta čestica i neutrino	4
	Fermijeva teorija beta raspada, gustina energetskih stanja i spektar beta čestica	6
	Kirijev grafik	10
3.	Čerenkovljevo zračenje	12
	Porijeklo i osobine	12
	Granični uslovi	15
	Grančne energije	17
4.	Radioaktivni izotop ^{226}Ra	19
	Osobine	19
	Prisutnost u vodi i rizik	22
	Zakonska regulativa	24
5.	LSC detektorski sistemi	26
	Niskofonski tečni scintilacioni spektrometar Quantulus 1220TM	26
	Detektorska zaštita	28
6.	Metode za određivanje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u vodi	32
7.	Ekperiment	34
	Podešavanje optimalnog prozora	36
	MDA (Minimum Detectable Activity)	37
	Kalibracija	38
	Validacija metode	40
8.	Zaključak	41
	Literatura	42

1. Uvod

Tečna scintilaciona spektroskopija (*Liquid Scintillation Counting, LSC*), odnosno *Liquid Scintillation Analysis* (LSA) je veoma česta metoda, koja se koristi za detekciju i analize radionuklida u životnoj sredini, posebno u vodama. Testiranje voda na prisutnost radionuklida se radi u cilju zaštite stanovništva od ionizujućeg zračenja i procjene radiološkog rizika po zdravlje ljudi.

Većina LSC metoda se vrši tako što se uzorci vode miješaju sa scintilacionim koktelom, nakog čega se rade mjerena u LS brojaču, odnosno detektoru. U našoj laboratoriji ta ispitivanja se vrše na niskofonskom tečnom scintilacionom detektoru Quantulus 1220TM.

Međutim postoji metoda u kojoj se uzorak vode ne miješa sa scintilacionim koktelom, već se vrše mjerena čistog uzorka vode, bez prisutnosti scintilizacionog koktela.

Obzirom da je zakonski dozvoljena granica koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u vodi manje od 0.5 Bq l^{-1} , cilj ovog rada da se provjeri da li metodom kojom se detektuje Čerenkovljevo zračenje i koja ne uključuje miješanje uzorka vode sa scintilacionim koktelom, može validno da se izmjeri prisutnost radioizotopa ^{226}Ra u vodi.

2. Beta raspad

Nakon otkrića radioaktivnosti ustanovljeno je da se jedna komponenta zračenja sastoji od elektrona i ta komponenta je nazvana beta zračenje, a proces koji za posljedicu ima emisiju elektrona iz jezgra nazvan beta raspad. Ova vrsta raspada je načešći obik spontane transformacije jezgra i doživljavaju ga sva jezgra koja se na neutron-protonskom grafiku nalaze van linije stabilnosti (osim manjeg broja teških jezgara, koja se raspadaju alfa raspadom). Periodi poluraspada beta emitera kreću se u veoma širokom vremenskom intervalu. Najmanji poznati period poluraspada je reda veličine 10^{-3} s dok je najveći $4 \cdot 10^{12}$ s. Ukupna energija koja se realizuje u beta raspodu se takođe kreće u širokom intervalu, od 18 keV do 16.6 MeV. Prilikom beta raspada dolazi do transformacije pojedinih nukleona i stvaranja čestica koje prije raspada nisu postojale unutar jezgra. [Krmr, 2013]

Vrste beta raspada i energijski uslovi

Elementi koji emituju beta zračenje vremenom se pretvaraju u elemente koji se u periodnom sistemu elemenata nalaze jedno mjesto udesno, pri čemu oba atoma, i predak i potomak imaju istu atomsku masu. To je takozvani Raderford-Sodijev zakon pomijeranja i može se prikazati kao:



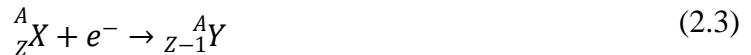
Znajući da se jezgro sastoji od protona i neutrona, zaključujemo da jezgro nastalo beta raspodom ima jedan proton u svom sastavu više u odnosu na jezgro pretka. To znači da se emisija elektrona prilikom beta raspada dešava kada se jedan neutron iz jezgra transformiše u proton. Broj nukleona ostaje isti, kao i atomska masa, pa možemo reći da u beta raspodu učestvuju izobari.

Otkrićem vještačke radioaktivnosti ustanovljeno je da nestabilna jezgra mogu da emituju pozitrone (pozitivne beta čestice). Tom prilikom produkt raspada je jezgro koje posjeduje jedan proton manje u odnosu na svog pretka, bez promjene atomskog broja. To možemo prikazati kao:



Ovakav proces se može objasniti pretpostavkom da se prilikom pozitronskog raspada jedan proton transformiše u neutron.

Konačno, moguće je da nestabilno jezgro zahvati jedan od orbitalnih elektrona, najčešće sa K ljeske. Tada od jednog protona i zahvaćenog elektrona nastane neutron. Ovaj proces se naziva elektronki ili K-zahvat. Takođe se radi o izobarnom procesu, a kako jezgro potomak ima jedan proton manje u odnosu na početno jezgro, redni projektil nastalog elementa je za jedinicu manji, a u periodnom sistemu se nalazi jedno mjesto uljevo. Prikazujemo kao:



Elektronski zahvat se može prepoznati po tome da se nakon zahvata elektrona emituje zračenje karakteristično za optički spektar atoma potomka. Do toga dolazi jer se na upražnjeno mjesto na K lјusci spušta elektron sa viših orbitala.

Sva tri procesa, elektronski (β^-) i pozitronski (β^+) raspad, kao i elektronski zahvat se smatraju beta raspadom.

Prilikom primjene zakona održanja energije mogu se dobiti uslovi koji moraju biti ispunjeni da bi došlo do nekog od tri moguće vrste beta raspada.

U slučaju β^- raspada, u raspad ulazi jezgro predak, a nastaju jezgro potomak i elektron, pa dobijamo:

$$M_j(A, Z) > M_j(A, Z + 1) + m_e \quad (2.4)$$

Indeks j u formuli (2.4) označava mase jezgara, a m_e masu elektrona. Ako lijevoj i desnoj strani dodamo Z masa elektrona dobija se:

$$M_{at}(A, Z) > M_{at}(A, Z + 1) \quad (2.5)$$

Iz izraza (2.5) se može zaključiti da je uslov za β^- raspad ispunjen za onaj atom koji ima veću masu od sledećeg atoma izbara kojem je redni broj za jedinicu veći, tj. u periodnom sistemu elemenata se nalazi desno od njega. Slično se može postaviti uslov za pozitronski raspad:

$$M_j(A, Z) > M_j(A, Z - 1) + m_e \quad (2.6)$$

Dodavanjem Z masa elektrona objema stranama u nejednačini (2.6) se dobija:

$$M_{at}(A, Z) > M_{at}(A, Z - 1) + 2m_e \quad (2.7)$$

Dakle, da bi neki atom emitovao pozitron, masa tog atoma mora da bude barem za dvije mase elektrona veća od mase atoma sa istim atomskim brojem, a koji se u periodnom sistemu nalazi ispred njega. I konačno, uslov za zahvat elektrona:

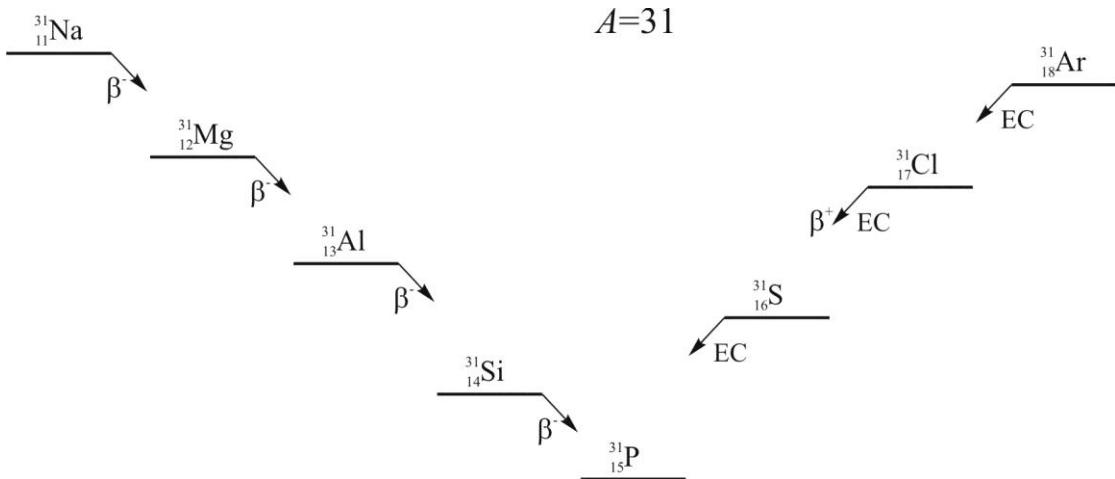
$$M_j(A, Z) + m_e > M_j(A, Z - 1) \quad (2.8)$$

U ovom slučaju, ukoliko obema stranama gorenje nejednačine dodamo $(Z-1)m_e$, dobija se:

$$M_{at}(A, Z) > M_{at}(A, Z - 1) \quad (2.9)$$

Zahvat elektrona se može desiti kod svih atoma kojima je masa veća od mase atoma istog atomskog broja koji se nalazi jedno mjesto ispred u periodnom sistemu. Iz gornjih nejednačina se može vidjeti da svi atomi koji ispunjavaju uslov za pozitronski raspad, u isto vrijeme ispunjavaju i uslov za zahvat elektrona. Suprotan uslov nije svaki put ispunjen. Ukoliko je ispunjen uslov za oba raspada (pozitronski i zahvat elektrona), koji će od njih biti dominantniji zavisi i od atomske mase. Kod lakših jezgara je vjerovatniji pozitronski raspad, dok je kod težih jezgara vjerovatniji zahvat elektrona. Razlog tome leži u tome da se K elektroni kod lakših atoma nalaze na većem rastojanju od jezgra, pa se shodno tome i smanjuje vjerovatnoća da elektron bude zahvaćen. Kod težih jezgara distanca između jezgra i elektrona na K lјusci je manja, što povećava vjerovatnoću elektronskog zahvata. Kod izobarnih lanaca sa parnim brojem

nukleona, jezgra istovremeno zadovoljavaju sva tri uslova pa mogu da određenom vjerovatnoćom da se raspadnu na sva tri načina. Na slici 2.1. je prikazan niz sa neparnim brojem nukleona. Nakon nekoliko uzastopnih beta prelaza, na kraju se dobija stabilno jezgro.



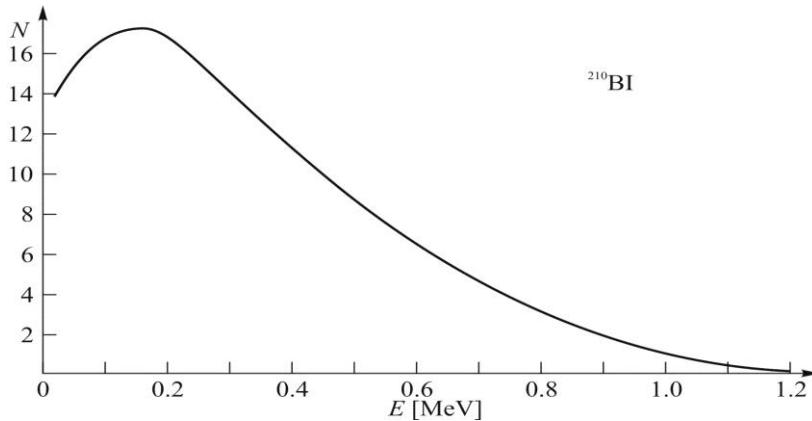
Slika 2.1. Izobarni niz $A=31$ [Krmar 2010]

Energijski spektar beta čestica i neutrino

Energija koja se oslobodi u β^- i β^+ raspadu zavisi od razlike mase jezgra pretka i zbiru masa jezgra potomka i elektrona (pozitrona). Kod elektronskog zahvata energija koja se oslobodi može se izračunati iz razlike zbiru masa elektrona i jezgra pretka, koji ulaze u proces i mase jezgra potomka kojeg dobijamo kao konačni produkt. Iz ovoga se očekuje da sve beta čestice koje se emituju u raspadu jednog radioizotopa imaju identičnu energiju. To bi bilo moguće ukoliko bi se raspad vršio na taj način da se jezgro potomak stvara u osnovnom energetskom stanju. Ukoliko bi jezgro potomak nakon raspada nastalo u nekom od pobjuđenih energetskih stanja, β čestice bi po energijama bile podijeljene u nekoliko grupa. Jezgro bi se oslobodilo viška energije emisijom γ zračenja, a energijski spektar beta čestica bi imao diskretan karakter i sastojao bi se od nekoliko linija.

Mjerenje energetskog spetra beta čestica ne predstavlja težak eksperimentalni problem. Pošto se radi o nanelektrisanim česticama, kombinacijom električnog i magnetnog polja može se postići njihovo prostorno razlaganje po energijama. Sistematskom izmjerenu spektara velikog broja beta emitera ustanovljeno je bez izuzetka da emitovane beta čestice imaju kontinuiran spektar. Ustanovljeno je da beta čestice mogu imati sve moguće energije, od nulte do neke maksimalne vrijednosti $(T_e)_{max}$, koja odgovara razlici energetskih stanja koja posjeduju jezgro predak i potomak. Za β^- raspad bi to bilo:

$$(T_e)_{max} = [M_j(A, Z) - (M_j(A, Z + 1) + m_e)]c^2 \quad (2.10)$$



Slika 2.2. Šematski prikaz izgleda energijskog spectra β^- čestica [Krmar 2013]

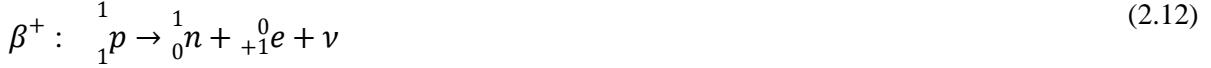
Kao što se može vidjeti sa slike 2.2., spektar β^- čestica je asimetričan. Utvrđeno je da je srednja energija emitovanih elektrona kod teških jezgara negdje oko jedne trećine maksimalne energije, dok je kod lakih jezgara ovaj spektar u većoj mjeri simetričan, a prosječna energija emitovanih beta čestica je oko polovine vrijednosti maksimalne energije.

Prepostavka da beta čestice dijele energiju sa gama fotonima u svim mogućim iznosima od nule do maksimane nije održiva jer je gama spektar linijski i sadrži fotone sa energijama koje odgovaraju razlici energija pojedinih pobuđenih nivoa jezgra. Energetska stanja jezgra potomka koja se pobuđuju prilikom beta raspada ni u kom slučaju nemaju kontinuiran karakter. Takođe, ukupan moment impulsa jezgra može da ima cijelu ili polucijelu vrijednost, izraženu u \hbar jedinicama, u zavisnosti od toga da li je ukupan broj nukleona u jezgru paran ili neparan. Elektron koji napusti jezgro prilikom β^- raspada posjeduje moment impulsa (spin) $1/2 \hbar$. Na osnovu zakona održanja momenta impulsa, upravo bi se za tu polovičnu vrijednost spina elektrona trebao promijentiti ukupni moment impulsa jezgra. To znači da bi jezgro sa parnim brojem nukleona, nakon beta raspada trebalo imati polucijelu vrijednost spina, bez obzira što je broj nukleona nije promijenio. Kako se ovo nikada ne dešava, pored zakona održanja energije, dovoden je u pitanje i zakon održanja momenta impulsa u beta raspadu.

Teorijsko objašnjenje ovog problema dao je Pauli 1930. godine, ali se na eksperimentalnu potvrdu čekalo jo 42 godine. Pauli je predložio da je prilikom beta raspada, pored beta čestice, emituje još jedna čestica koju je nazvao neutrino. Emitovani elektron (ili pozitron) podijelili bi ukupnu energiju raspada koja im stoji na raspolaganju u svim mogućim iznosima što konačno energetski spekar beta čestica čini kontinuiranim. [Krmar, 2013]

Neutrino ima osobinu da veoma slabo interaguje sa materijom te se nakon emisije udalji noseći dio energije raspada, a da ni na koji način ne bude detektovan. Zahtjev da neutrino slabo interaguje sa materijom može biti ispunjen ako ne posjeduje naielktrisanje, niti magnetni moment pa zbog toga ne vrši ionizaciju materije kroz koju prolazi. Neutrino ne bi trebao imati masu, ili ako je posjeduje, trebala bi biti veoma mala. Zakon održanja momenta impulsa nalaže

da neutrino ima spin $1/2 \hbar$, što bi značilo, po Dirakovo teoriji, da ima i antičesticu. Sada ćemo vidjeti kako se prema Paulijevoj teoriji odvijaju sva tri procesa beta raspada:



Ukoliko sada uzmemo u obzir postojanje neutrina, zakoni održanja energije i impulsa mogu se napisati u egzaktnom obliku. Na primjer, za elektronski beta raspod zakoni održanja bi bili:

$$M_j(A, Z)c^2 = (M_j(A, Z + 1) + m_e)c^2 + E(A, Z + 1) + E_e + E_{\tilde{\nu}} \quad (2.14)$$

$$0 = \vec{p}(A, Z + 1) + \vec{p} + \vec{q} \quad (2.15)$$

Izrazi (2.14) i (2.15) su napisani uz pretpostavku da antineutrino nema masu, već figuriše samo njegova kinetička energija $E_{\tilde{\nu}}$. Sa E_e je označena kinetička energija beta čestica, $E(A, Z + 1)$ je energija uzmaka jezgra potomka, dok su $\vec{p}(A, Z + 1), \vec{p}, \vec{q}$ impulsi jezgra potomka, beta čestice i antineutrina respektivno.

Fermijeva teorija beta raspada, gustina energetskih stanja i spektar beta čestica

Elektroni i pozitroni ne postoje u jezgru, već se zajedno sa neutrinima i antineutrinima stvaraju prilikom beta raspada.

Fermi je uveo takozvane slabe sile odgovorne za transformaciju protona u neutron i obrnuto. Znajući da je najkraći period poluraspada nekog beta emitera 10^{-3} s, što je mnogo duže od karakterističnih vremena jake nuklearne interakcije (10^{-22} s), najvjerovaljnije je da se beta raspod odvija pod dejstvom veoma slabe sile. Sve čestice koje ne učestvuju u jakoj, već u slaboj interakciji se nazivaju jednim imenom leptoni. Prema Fermijevoj teoriji, neutrino i antineutrino se smatraju kvantima leptonskog polja. Po kvantno mehaničkom formalizmu, vjerovatnoća nekog procesa je u stvari jednaka vjerovatnoći da se sistem u kome se taj proces odvija prevede iz početnog stanja opisanog talasnom funkcijom ψ_i u krajnje stanje koje se opisuje talasnom funkcijom ψ_f , i ta vjerovatnoća je:

$$\lambda = \frac{2\pi}{\hbar} |H_{if}|^2 \frac{dn}{dE_f} \quad (2.16)$$

Ovo se naziva Fermijevo zlatno pravilo. Sa $\frac{dn}{dE_f}$ je označena gustina krajnjih (finalnih) stanja dok je veličina $|H_{if}|$ matrični element dat sa:

$$H_{if} = \int \psi_f^* H \psi_i d\nu \quad (2.17)$$

H je operator interakcije koji prevodi sistem iz početnog u krajnje stanje, a $d\nu$ je element zapremine u kome se sistem nalazi tokom procesa koji posmatramo. Talasnu funkciju finalnog stanja možemo napisati kao:

$$\psi_f = \psi_p \varphi_e \varphi_{\tilde{\nu}} \quad (2.18)$$

Gdje su $\psi_p, \varphi_e, \varphi_{\tilde{\nu}}$ talasne funkcije jezgra potomka, elektrona i antineutrina. Tada matrični element možemo predstaviti u obliku:

$$H_{pk} = \int \psi_p^* \varphi_e^* \varphi_{\tilde{\nu}}^* H \psi_i d\nu \quad (2.19)$$

Jednačina (2.19) se može razviti uvrštavanjem izraza za talasnu funkciju antineutrina i elektrona. Kako po definiciji, antineutrino slabo interaguje sa materijom, možemo ga smatrati slobodnom česticom, pa se zbog toga njegova talasna funkcija može predstaviti ravanskim talasom, što takođe primjenjujemo i kod elektrona, mada kod elektrona to predstavlja aproksimaciju:

$$\varphi_{\tilde{\nu}} = \frac{1}{\sqrt{V}} \exp\left(\frac{i\vec{q}\vec{r}}{\hbar}\right) \quad (2.20)$$

$$\varphi_e = \frac{1}{\sqrt{V}} \exp\left(\frac{i\vec{p}\vec{r}}{\hbar}\right) \quad (2.21)$$

Ova aproksimacija se pokazala prihvatljivom za jezgra koja imaju broj protona manj od 10, ili za beta čestice energije veće od 200keV. Eksponencijalni dio prethodnih jednačina se može razviti u stepeni red, koji bi u slučaju elektrona imao sledeći oblik:

$$\exp\left(\frac{i\vec{p}\vec{r}}{\hbar}\right) = 1 + \frac{i\vec{p}\vec{r}}{\hbar} + \dots \quad (2.22)$$

Za energije beta čestica reda veličine 1MeV i standardne dimenzije jezgra, već za prvi član u razvoju (2.22) dobijamo da je mnogo manji od 1, pa se može zanemariti. Ovo se naziva dozvoljena aproksimacija, a svi prelazi koji se na zadovoljavajući način mogu opisati ovom aproksimacijom nazivaju se dozvoljeni prelazi.

Matematička forma operatora H Fermiju nije bila poznata, a u našem slučaju nije od suštinskog značaja, pa je predstavljen kao linearna kombinacija svih pet mogućih oblika interakcije. Mi ćemo poći od najjednostavnijeg slučaja kada se pretpostavi da je perturbacioni operator jednak konstanti, tj. $H = g$ (g označava intenzitet slabe interakcije). Nakon ovog dobijamo:

$$H_{pk} = \int \psi_p^* \varphi_e^* \varphi_{\tilde{\nu}}^* H \psi_i d\nu = \frac{g}{V} \int \psi_p^* \psi_i d\nu = \frac{g}{V} M_{if} \quad (2.23)$$

Gdje je M_{if} matrični elemnt određen samo svojstvima talasne funkcije početnog i krajnjeg stanja jezgra, a ne zavisi od impulsa beta čestice i neutrina. Iz uslova normiranja $\int \psi^* \psi d\nu = 1$

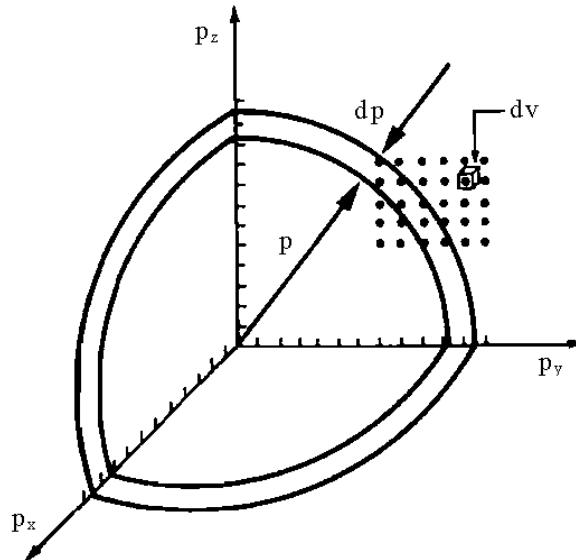
dobijamo da će matrični element M_{if} , a samim tim i vjerovatnoća beta prelaza, imati najveću vrijednost u slučaju kada su talasne funkcije početnog i krajnjeg stanja najsličnije.

Fermijeva teorija se može provjeriti poređenjem mjerenog i teorijskim putem procijenjenog energetskog spektra elektrona ili pozitrona. Energetski spektar u velikoj mjeri zavisi od gustine konačnih stanja. Ako se neki zatvoren sistem, određene energije prevede iz početnog u neko krajnje stanje, pod dejstvom određenog potencijala, on će zauzeti neko od bliskih energetskih stanja. Širina oblasti u kojoj se to stanje može naći, dobija se uz pomoć Hajzenbergove relacije, na osnovu vremena potrebnog perturbacionom potencijalu da prevede sistem iz osnovnog u konačno stanje.

Da bi predviđeli oblik energetskog spektra beta čestica, neophodno je znati koja su konačna stanja na raspolaganju produktima raspada. Razmotrimo jedan raspad u kome je emitovan elektron sa impulsom \vec{p} i antineutrino sa impulskom \vec{q} . U koordinatnom sistemu impulsa elektrona, vektori određenog impulsa \vec{p} će činiti sferu poluprečnika datog izrazom:

$$|\vec{p}| = \sqrt{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2} \quad (2.24)$$

Svi impulsi koji se nalaze oko vrijednosti impulsa p u opsegu širine dp će se nalaziti u sfernoj ljesuci poluprečnika $|\vec{p}|$ i debljine dp , kao što vidimo na slici 2.3.. Zapremina te oblasti je $4\pi p^2 dp$.



Slika 2.3. Element zapremine u p prostoru [Krmar, skripta, 2017]

Ukoliko se elektron nalazi u nekoj zapremini V , ukupan broj krajnjih energetskih stanja dn_e u kojima se taj elektron može naći zavisi od broja stanja impulsa u intervalu od p do $p + dp$. Ovaj broj se može izraziti kao:

$$dn_e = \frac{4\pi q^2 dq V}{\hbar^3} \quad (2.25)$$

Na isti način možemo izvesti izraz i za broj konačnih stanja antineutrina:

$$dn_{\bar{\nu}} = \frac{4\pi q^2 dq V}{\hbar^3} \quad (2.26)$$

Ukupan broj stanja koji će imati elektroni i antineutrini sa odgovarajućim impulsima će biti:

$$dn = dn_e dn_{\bar{\nu}} = \frac{(4\pi)^2 p^2 dp q^2 dq V^2}{\hbar^6} \quad (2.27)$$

Diferencijalna vjerovatnoća prelaza sa određenim impulsom elektrona bi bila:

$$d\lambda = \frac{d\pi}{\hbar} \frac{g^2}{V^2} |M_{if}|^2 \frac{dn_{\bar{\nu}}}{dE_f} dn_e \quad (2.28)$$

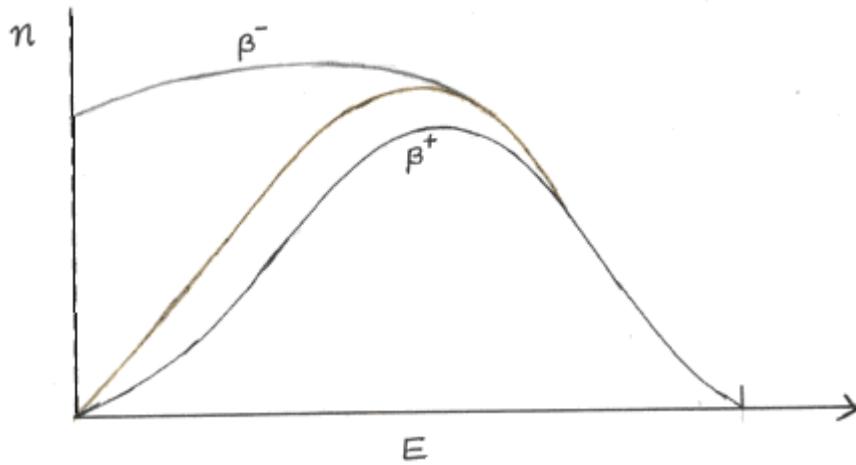
Spektar impulsa elektrona $I(p)$ emitovanih u beta raspodu:

$$\frac{d\lambda}{dp} = I(p) = C p^2 (Q - E_e)^2 \quad (2.29)$$

Gde je C konstanta, a $Q = E_e + qc$ što predstavlja energiju koja se oslobadja u raspodu.

Spektar energija elektrona možemo pisati na sledeći način:

$$\frac{d\lambda}{dE_e} = I(E) = C (E_e^2 + 2T_e m_e c^2)^{1/2} (Q - E_e)^2 (E_e + m_e c^2) \quad (2.30)$$



Slika 2.4. Šematski prikaz oblika mjerenog spektra elektrona i pozitrona u poređenju sa teorijski procijenjenim spektrom [Krmar, skripta]

Na slici 2.4. su prikazani oblici spektra elektrona i pozitrona dobijenih mjeranjem, kao i oblik spektra dobijen teorijskim putem. Razlike potiču od nanelektrisanja emitovanih čestica. Elektroni nakon izlaska iz jezgra bivaju privučeni od strane jezgra potomka pod dejstvom Kulonovih sila što im umanjuje energiju, dok pozitroni bivaju odbijeni, što kao rezultat daje povišenje energije pozitrona. Zbog ovog elektroni imaju komponentu spektra u niskoenergetskom dijelu, koja se znatno razlikuje od teorijske procjene, a kod pozitrona se vidi da je spektar pomjerен ka višim energijama. Očigledno je da se moraju uzeti u obzir i Kulonovski efekti, te dodajemo još jedan član koji se obično naziva Fermijev faktor i ima sledeći oblik:

$$F(Z_p, E_e) = \frac{2\pi\eta}{1 - \exp(2\pi\eta)} \quad (2.31)$$

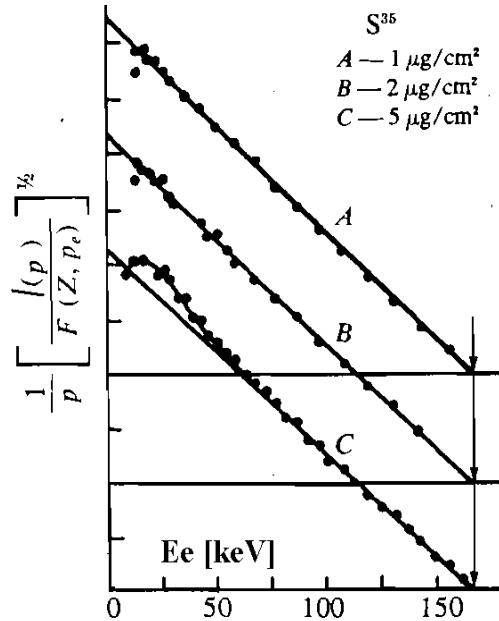
Z_p predstavlja nanelektrisanje jezgra potomka.

Kirijev grafik

Ako spektralnoj funkciji raspodjele impulsa dodamo i Fermijev član i svedemo ga na oblik gdje će sve vrijednosti koje zavise od impulsa biti na jednoj strani dobijamo:

$$\left[\frac{I(p)}{p^2 F(Z_p, E_e)} \right]^{1/2} = C(Q - E_e) \quad (2.32)$$

Lijeva strana jednačine (2.32), ako se predstavi kao funkcija energije elektrona E_e treba da bude prava linija negativnog nagiba koja x-osu presijeca u vrijednosti $E_e = Q$. Na ovaj način se lako može odrediti i energija beta raspada (slika 2.5.)



Slika 2.5. Kirijev grafik za raspad ^{35}S . Eksperimentalne tačke su dobijene za tri izvora različitih debljina
[Krmr, skripta, 2017]

Sa grafika se može vidjeti da eksperimentalne vrijednosti dobijene iz spektra većinom jesu linearne (primjer ^{35}S). Malo odstupanje na nižim energijama potiče od rasijanja beta čestica u samom izvoru i ne pojavljuju se ukoliko je izvor veoma tanak. Za beta prelaze kod kojih je Kirijev grafik linearan kažemo da su dozvoljeni i uočavaju se kod velikog broja beta emitera. Takođe je zabilježen veliki broj slučajeva kada Kirijev grafik nije linearan (primjer ^{91}Y). Ovo odstupanje potiče od nedovoljno dobro predviđene energetske zavisnosti nekog od čanova u jednačini:

$$\frac{d\lambda}{dE_e} = I(E) = C \left(E_e^2 + 2T_e m_e c^2 \right)^{1/2} (Q - E_e)^2 (E_e + m_e c^2) \quad (2.33)$$

Ovaj problem se rješava uvođenjem još jednog korekcionog člana koji zavisi od impulsa emitovanih čestica i obilježavamo ga sa $S(p, q)$ i naziva se faktor oblika.

[Krmar, skripta, 2017]

3. Čerenkovljevo zračenje

Naelektrisane čestice koje posjeduju dovoljnu energiju, prolaskom kroz neku sredinu, brzinom većom od brzine svjetlosti u toj sredini, mogu da izazovu emisiju fotona svjetlosti. Ova pojava naziva se Čerenkovljevo zračenje ili Čerenkovljev efekat.

Porijeklo i osobine

Naelektrisana čestica, prilikom prolaska kroz neku transparentnu sredinu (gas, tečno ili čvrsto stanje), duž svoje putanje može da vrši lokalnu polarizaciju atoma te sredine. Ta polarizacija se ogleda u indukovanim dipolnog momenta u okolnim atomima uslijed dejstva električnog polja čestice na orbitalne elektrone. Elektroni bivaju privučeni ili odbijeni od naelektrisane čestice zračenja na na taj način se stvori kratkotrajni dipol. Nakon prolaska te naelektrisane čestice dolazi do depolarizacije, elektroni se vraćaju u prvobitno stanje i što dovodi do emisije elektromagnetskog zračenja.

Ako se čestice kreću brzinom manjom od neke granične, prostorna raspodjela polarizacije oko nje je potpuno simetrična i u tom slučaju se svo zračenje emitovano prilikom polarizacije međusobno poništava. U slučaju kada čestica ima brzinu veću od neke granične, električno polje čestice ne uspijeva da polarizuje atome koji se nalaze ispred, već samo one iza. Ovo dovodi do asimetrične polarizacije. Prilikom depolarizacije ovakvog asimetrično polarizovanog sistema atoma neće se sve elektromagnetno zračenje poništiti, već će doći do reemisije nekog rezultujućeg elektromagnetskog zračenja, odakle vidimo da se Čerenkovljevo zračenje vrši na račun kinetičke energije naelektrisane čestice.

Ovaj fenomen ima prektičnu primjenu uključujući mjerjenje i detekciju radionuklida koji emituju beta čestice relativno velike energije, mjerjenje gama zračenja izazvano Komptonovim elektronima i za identifikaciju subatomskih čestica.

Ovaj efekat je otkrio ruski fizičar Pavel A. Cherenkov (1904-1990) dok je radio na svojoj doktorskoj disertaciji. Kada je primjetio ovu jedinstvenu, vidljivu vrstu zračenja koju proizvode Komptonovi elektroni ili visokoenergetske beta čestice, Čerenkov je otkrio da je dobijena svjetlost polarizovana i da je svjetlosna emisija asimetrična, tj. da se emituje samo u pravcu brzih elektrona, znao je da je da se radi o nečemu još nepoznatom. Čerenkov je sa svojim mentorima objasnio da je ovaj fenomen kao posljedicu prolaska naelektrisanih čestica kroz neku sredinu brzinom većom od brzine svjetlosti u toj sredini. Već je bilo poznato iz Ajnštajnovе teorije relativnosti da materija ne može putovati brzinom većom od brzine svjetlosti u vakuumu ($c = 2.99 \cdot 10^8 \frac{m}{s}$). Međutim u gasovima, tečnostima i čvrstim tijelima, svjetlost ima manju brzinu nego u vakuumu, tako da elementarne čestice koje posjeduju određenu energiju mogu da imaju brzine veće od brzine svjetlosti u takvim supstancama.

Naelektrisane čestice prilikom prolaska pored elektronskih oblaka supstance kroz koju se kreću, stvaraju elektromagnetični talas, slično kao probijanje zvučnog zida uzrokovanih džet avionima ili projektilima u atmosferi, koji se kreću brzinom većom od brzine zvuka.

Prepostavimo da se elektron kreće konstantnom brzinom v duž ose kroz supstancu koja ima indeks prelamanja n . Električno polje atoma može se smatrati kao posljedica superpozicije sfernih talasa koje emituje brzi elektron i koji se prostiru brzinom c/n . Lako se zaključuje da će svi ovi uzastopno emitovani talasi biti u fazi i da će se prostirati duž pravca koji sa glavnom osom, po kojoj se kreće elektron, gradi ugao θ , samo ako v, n i θ zadovoljavaju uslov:

$$\cos \theta = \frac{1}{\beta n} \quad (3.1)$$

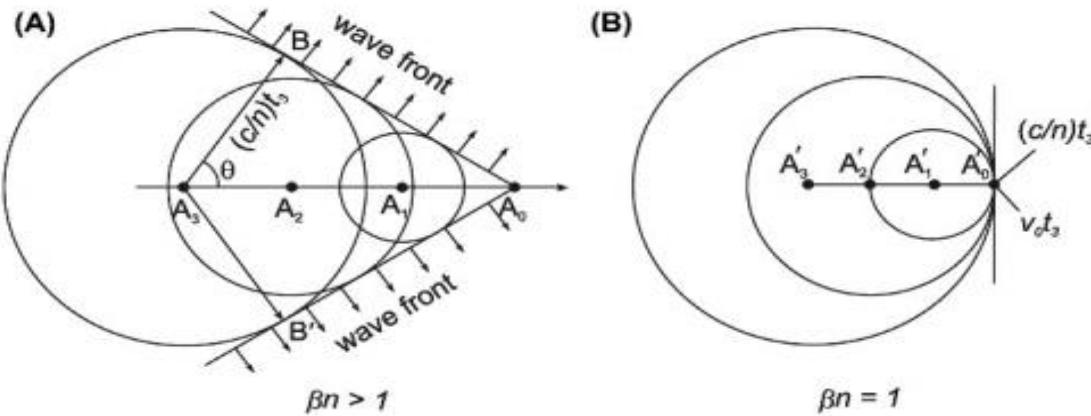
Gdje je $\beta = v/c$. Dakle, zračenje će biti emitovano u pravcu ugla θ , dok će interferencija talasa spriječiti zračenje u bilo kom drugom pravcu. Gornji uslov može biti ispunjen jedino ako je:

$$\beta n > 1 \quad (3.2)$$

Tj., samo u slučaju kada je indeks prelamanja supstance, kroz koju elektron prolazi, izrazito veći od 1. [Frank I., Tamm I., 1937]

Indeks prelamanja, n , je po definiciji količnik brzine svjetlosti u vakuumu i njene brzine u određenoj sredini, i njegova vrijednost varira od jedne do druge supstance. Termin „brzi elektroni“ koji se koriste u prethodnom tekstu odnose se na takve elektrone, čija je energija dovoljno velika da kroz supstancu putuju brzinom većom od brzine svjetlosti u toj sredini. Takođe, β se još naziva relativna fazna brzina, a predstavlja brzinu čestice podijeljenu sa brzinom svjetlosti u vakuumu ($\beta = v/c$).

Jednačina: $\cos \theta = 1/\beta n$, se može naći iz udaljenosti koju pređe front sfernog talasa u odnosu na udaljenost koju pređe elektron, kao što je prikazano na slici 3.1.



Slika 3.1. Hajgensova konstrukcija sfernog talasa nanelektrisane čestice koja se kreće kroz određenu sredinu od tačke A_3 do A_0 , brzinama (A) $\beta n > 1$ i (B) $\beta n = 1$ [L'Annunziata 2012]

Svaka tačka trajektorije čestice se mora smatrati kao izvor novog talasa. U tom slučaju faza talasa je određena trenutnim prolaskom čestice kroz određenu tačku. Pretpostavimo da u je trenutku $t = -t_3$ emiter je u tački A_3 , u trenutku $t = -t_2$ je u tački A_2 , u $t = -t_1$ je u tački A_1 i konačno u posmatranom trenutku $t = 0$ emiter je u tački A_0 . Brzina talasa je jednaka faznoj brzini svjetlosti c/n . Površinu zraka čine sfere čiji su poluprečnici za tačke A_3, A_2, A_1 i A_0 , $\left(\frac{c}{n}\right)t_3, \left(\frac{c}{n}\right)t_2, \left(\frac{c}{n}\right)t_1$ i 0 , respektivno. Prema Hajgensovom principu, pravac zraka je određen je radijus vektorom povućenim iz centra talasa do tačke dodira sa omotačem sfere. Primjer sa gornje slike je A_3B i A_3B' iz čega nije teško odrediti graničnu brzinu. Kada se brzina smanjuje, udaljenost između tačaka se povećava. Granični slučaj nastaje kada tačka A zauzme položaj A_0' na površini sfere (prikazan posebno na slici 2.1.). Na nižim brzinama neka od sfera se nalazi u potpunosti unutar druge, tako da nemaju zajednički omotač. U graničnom slučaju ($\beta n = 1$), one imaju samo zajedničku tačku A_0' . Prema tome je očigledno da je $\left(\frac{c}{n}\right)t_3 = v_0 t_3$. Normale talasa su u pravcu brzine i talasni konus se transformiše u ravan okomitu na osu kretanja u tački A_0' . [Frank, 1958]

Jednačina koja definiše ugao θ , kao funkciju fazne brzine čestice i indeksa prelamanja, izvedena je iz udaljenosti koju pređe talasni front u odnosu na udaljenost koju pređe čestica. Brzina talasnog fronta v u nekoj sredini je funkcija indeksa prelamanja te sredine, jer je po definiciji $n = c/v$. Udaljenost koju pređe talasni front od A_3 do B je $A_3B = vt_3$, dok je udaljenost koju pređe nanelektrisana čestica za isto vrijeme od A_3 do A_0 , $A_3A_0 = v_p t_3$, gdje je v_p brzina čestice kroz tu sredinu. Pređeni put čestice možemo drugačije napisati kao $A_3A_0 = \left(\frac{v_p}{c}\right)ct_3$. Kako je fazna brzina čestice β definisana kao $\beta = v_p/c$, pređeni put čestice je $A_3A_0 = \beta ct_3$. Ugao θ pod kojim se emituje Čerenkovljevo zračenje u odnosu na pravac nanelektrisane čestice je:

$$\cos \theta = \frac{AB}{A_3A_0} = \frac{\left(\frac{c}{n}\right)t_3}{\beta ct_3} = \frac{1}{\beta n} \quad (3.3)$$

Prema tome, Čerenkovljevi fotoni se ne emituju jednako u svim pravcima već anizotropno, u obliku konusa ugla θ .

Ako čestica ima neku maksimalnu brzinu, kada β teži jedinici, dobija se i maksimalan ugao emisije θ Čerenkovljevih fotona:

$$\cos \theta_{max} = \frac{1}{n}, \quad \beta = 1 \quad (3.4)$$

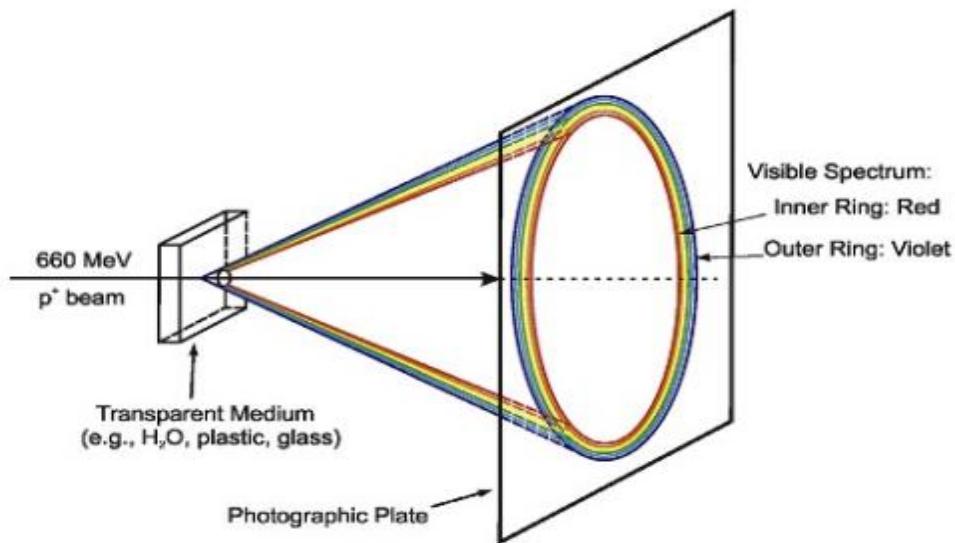
Primjer: Ako elektron putuje kroz vodu, čiji je indeks prelamanja $n = 1.3330$, maksimalnom brzinom ($\beta = 1$), maksimalan emisioni ugao Čerenkovljevih fotona prema jednačini $\cos \theta_{max} = 1/n$ je:

$$\theta_{max} = \cos^{-1} \frac{1}{1.3330} = 41.4^\circ \quad (3.5)$$

U nekoj drugoj supstanci, kao što je benzen, čiji je indeks prelamanja $n = 1.50108$, maksimalan ugao emisije je 48.2° .

Prema tome Čerenkovljevi fotoni se emituju po konusu čiji ugao može da varira od nule do neke maksimalne vrijednosti, u zavisnosti od brzine čestice i indeksa prelamanja sredine kroz koju se čestica kreće.

Konusno prostiranje Čerenkovljevog zračenja, opisano od strane Čerenkova prikazano je na slici 3.2.:



Slika 3.2. Eksperimentalni prikaz Čerenkovljevog zračenja na fotografskoj ploči [L'Annunziata 2020]

Ako zamislimo ovu sliku prostorno, a ne u ravni, zračenje se širi po površini konusa čija osa predstavlja putanju nanelektrisane čestice, a sa omotačem konusa gradi ugao θ .

Ako se fotografска ploča postavi normalno na snop visokoenergetih čestica, na ekranu se dobija trag snopa u obliku prstena.

Prepostavljeno je da se radi o nekoj određenoj frekvenciji svjetlosti, međutim u realnosti je drugačije, tj. spektar zračenja je kontinuiran. Budući da unutar supstance dolazi do disperzije svjetlosti, odnosno indeks prelamanja zavisi od frekvencije svjetlosti, znači da svjetlost razičitih talasnih dužina pada na fotografsku ploču. Zbog toga, iako je brzina čestica konstantna, uglovi emisije svjetlosti razičitih talasnih dužina će se razlikovati jedni od drugih. Dakle, zračenje se razlaže kao u spektralnoj analizi. Na fotografskoj ploči ćemo vidjeti zračenje određenog intenziteta, gdje je crvena boja u unutrašnjem dijelu prstena, dok će na spoljašnjem biti ljubičasta. [Cherenkov, 1958]

Granični uslovi

Kao što je razmotreno ranije, da bi došlo do Čerenkovljevog zračenja mora biti ispunjen uslov:

$$\beta n = 1 \quad (3.6)$$

Samo nanelektrisane čestice koje posjeduju faznu brzinu $\beta > 1/n$, mogu da dovedu do Čerenkovljevog zračenja. Vrijednost fazne brzine čestice β , zavisi od njene kinetičke energije, koja se dobija iz jednačine za ukupnu energiju čestice. Ukupna energija čestice je suma njene kinetičke energije (E_k) i energije mirovanja ($m_0 c^2$):

$$E_{tot} = E_k + m_0 c^2 = \gamma m_0 c^2 \quad (3.7)$$

Odakle je:

$$E_k = \gamma m_0 c^2 - m_0 c^2 \quad (3.8)$$

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - (\frac{u^2}{c^2})}}, \quad \frac{u^2}{c^2} = \beta^2 \quad (3.9)$$

Gdje je u brzina čestice i $u < c$.

Ako je m_0 masa mirovanja čestice, onda će njena relativna masa, m_r , koja zavisi od brzine čestice, biti definisana kao:

$$m_r = \frac{m_0}{\sqrt{1 - (\frac{u^2}{c^2})}} = \frac{m_0}{\sqrt{1 - \beta^2}} \quad (3.10)$$

Stoga, za česticu koja se kreće nekom relativističkom brzinom, izraz za njenu kinetičku energiju možemo izraziti kao:

$$E_k = m_0 c^2 \left[\frac{1}{(1 - \beta^2)^{1/2}} - 1 \right] \quad (3.11)$$

Gdje je $c = 2.99 \cdot 10^8 \text{ m/s}$, E_k kinetička energija u džulima ($1.602 \cdot 10^{-19} \text{ J} = 1 \text{ eV}$)

Iz jednačine (3.11) možemo izraziti faznu brzinu čestice:

$$\beta = \left[1 - \left(\frac{1}{(E_k/m_0 c^2) + 1} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (3.12)$$

Energija mirovanja elektrona je $m_0 c^2 = (9.109 \cdot 10^{-31} \text{ kg})(2.9979 \cdot 10^8 \text{ m/s})^2 = 8.19 \cdot 10^{-14} \text{ J}$. Ovu energiju možemo pretvoriti u eV: $\frac{8.19 \cdot 10^{-14} \text{ J}}{1.602 \cdot 10^{-19} \text{ J/eV}} = 511 \text{ keV}$

Ako ubacimo masu mirovanja elektrona u izraz za faznu brzinu elektrona (3.12), dobijamo:

$$\beta = \left[1 - \left(\frac{1}{(E_k/511 \text{ keV}) + 1} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (3.13)$$

Dakle, vrijednost fazne brzine elektrona ili beta čestice β , zavisi od kinetičke energije te čestice.

Grančne energije

U prethodnom tekstu smo vidjeli da je fazna brzina čestice β ključan faktor za pojavu Čerenkovljevog efekta. Kako kinetička energija zavisi od brzine čestice, možemo reći da kinetička energija ključan faktor za nastanak Čerenkovljevog zračenja. Ako primjenimo graničnu vrijednost β , što je $1/n$, moći ćemo da izračunamo granučnu vrijednost energije koju čestica mora da posjeduje da bi došlo do ovog efekta. Ova energije će u suštini biti funkcija indeksa prelamanja supstance kroz koju se čestica kreće:

$$E_{th} = m_0 c^2 \left[\left(1 - \frac{1}{n^2} \right)^{-1/2} - 1 \right] \quad (3.14)$$

Vidimo da će granična vrijednost energije varirati u zavisnosti od mase mirovanja čestice, i indeksa prelamanja sredine kroz koju se ta čestica kreće. Ova energija će se povećavati sa povećanjem mase, a biće manja što je indeks prelamanja veći.

Energija mirovanja elektrona je :

$$m_0 c^2 = (9.109 \cdot 10^{-31} \text{ kg}) (2.9979 \cdot 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}}) = 8.19 \cdot 10^{-14} \text{ J}$$

$$\text{Ako je pretvorimo u eV dobijamo: } \frac{8.19 \cdot 10^{-14} \text{ J}}{1.602 \cdot 10^{-19} \frac{\text{J}}{\text{eV}}} = 511 \text{ keV}$$

Uvrštavanjem energije mirovanja elektrona, jednačina za graničnu energiju je:

$$E_{th} = 511 \text{ keV} \left[\left(1 - \frac{1}{n^2} \right)^{-1/2} - 1 \right] \quad (3.15)$$

Mjerenje odbroja Čerenkovljevih fotona je jedna od uobičajenih tehnika za ispitivanje radionuklida. Prethodna jednačina se može koristiti za procjenu sposobnosti date supstance da detektuje beta čestice emitovane iz određenog radionuklida.

Kritična energija beta čestice koja će dovesti do Čerenkovljevog efekta u vodi, čiji je indeks prelamanja $n = 1.3330$, je:

$$\begin{aligned} E_{th} &= 511 \text{ keV} \left[\frac{1}{\sqrt{1 - \frac{1}{(1.333)^2}}} - 1 \right] \\ &= 511 \text{ keV} \left[\frac{1}{\sqrt{0.43721}} - 1 \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= 511 \text{keV} \left[\frac{1}{0.66121} - 1 \right] \\
&= (0.511 \cdot 10^6 \text{eV})(0.51236) \\
&= 0.262 \text{ MeV}
\end{aligned} \tag{3.16}$$

Prema tome, beta čestica mora imati minimalnu energiju od 0.262 MeV da bi dovela do emisije fotona u vodi.

4. Radioaktivni izotop ^{226}Ra

Radijum je hemijski element atomskog broja Z=88, šesti je element druge grupe periodnog sistema elemenata i pripada zemnoalkalnim metalima. Čisti radijum je srebrnkastobijele boje. Naziv je dobio od latinske riječi „radium“ što znači zračiti. Svi radijumovi izotopi su veoma radioaktivni, različitih perioda poluraspada. Otkrili su ga Marie i Pierre Curie, 1898 godine tako što su uspjeli da izvuku 1mg Ra iz deset tona uranijumove rude. On se takođe može naći i u torijumovim rudama, ali samo u tragovima. On je najteži zemnoalkalni metal i iz ove grupe jedini je radioaktiv. Izaziva radioluminescenciju, zbog čega se koristio u bojama kojima su se farbale kazaljke na satu. Nema nikakvu biološku primjenu zbog visoke radioaktivnosti i uglavnom se koristi samo u nuklearnoj fizici.



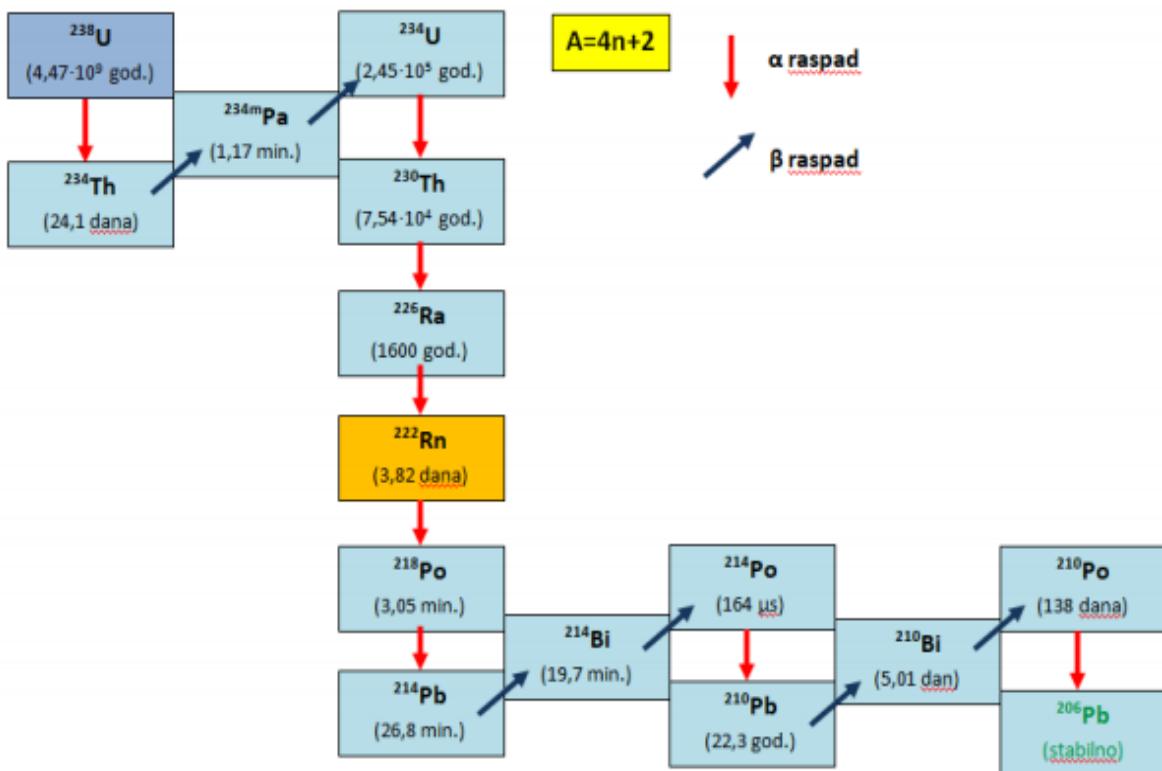
Slika 4.1. Radijum

Osobine

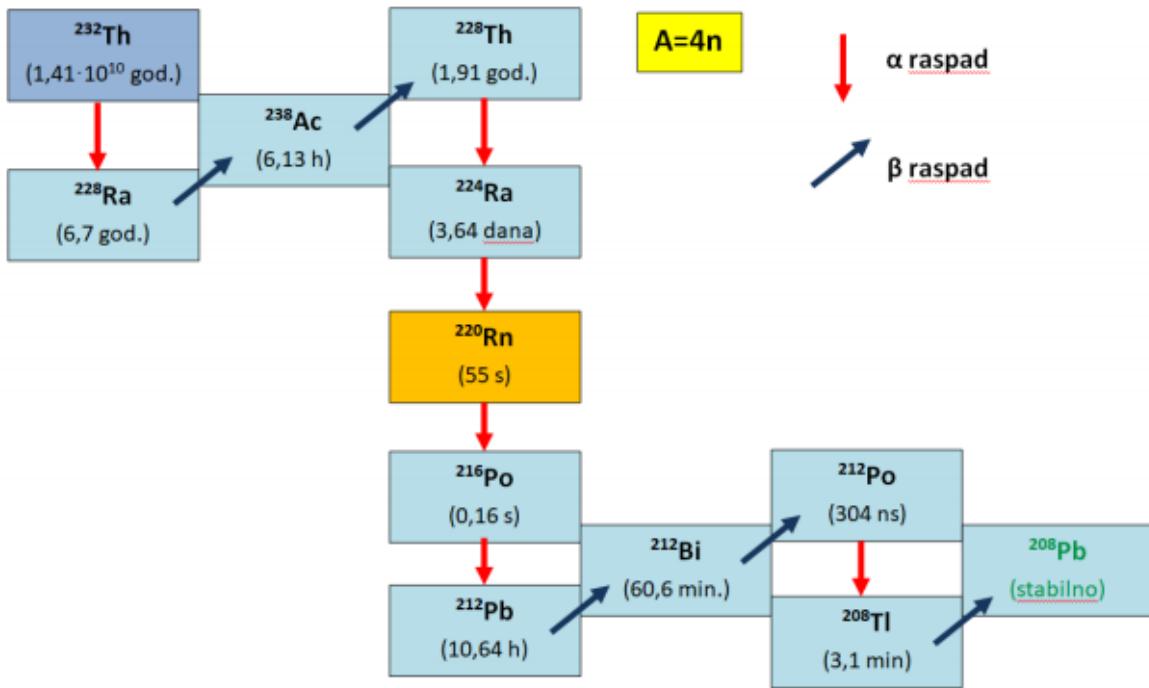
Uranijum ima trideset tri izotopa, a od toga su četiri prirodna, od kojih je najstabilniji ^{226}Ra , sa najdužim periodom poluraspada ($T_{1/2} = 1600$ godina) i pripada prirodnom radioaktivnom nizu ^{238}U (slika 4.2.), zatim su tu ^{228}Ra ($T_{1/2} = 5.75$ godina) i ^{224}Ra ($T_{1/2} = 3.63$ dana) koji pripadaju torijumovom ^{232}Th nizu (slika 4.3.) i ^{223}Ra ($T_{1/2} = 11.43$ dana) koji pripada prirodnom nizu ^{235}U (slika 4.4.). Jedini vještački izotop radijuma koji ima značajniji period poluraspada, u odnosu na ostale sa mnogo manjim periodom poluraspada, je ^{225}Ra ($T_{1/2} = 14,9$ dana) i on pripada nizu ^{237}Np , a najviše se koristi u naučnoistraživačke svrhe, u hemiji i nuklearnoj fizici kao marker.

Tabela 4.1. Prirodni izotopi radijuma 1

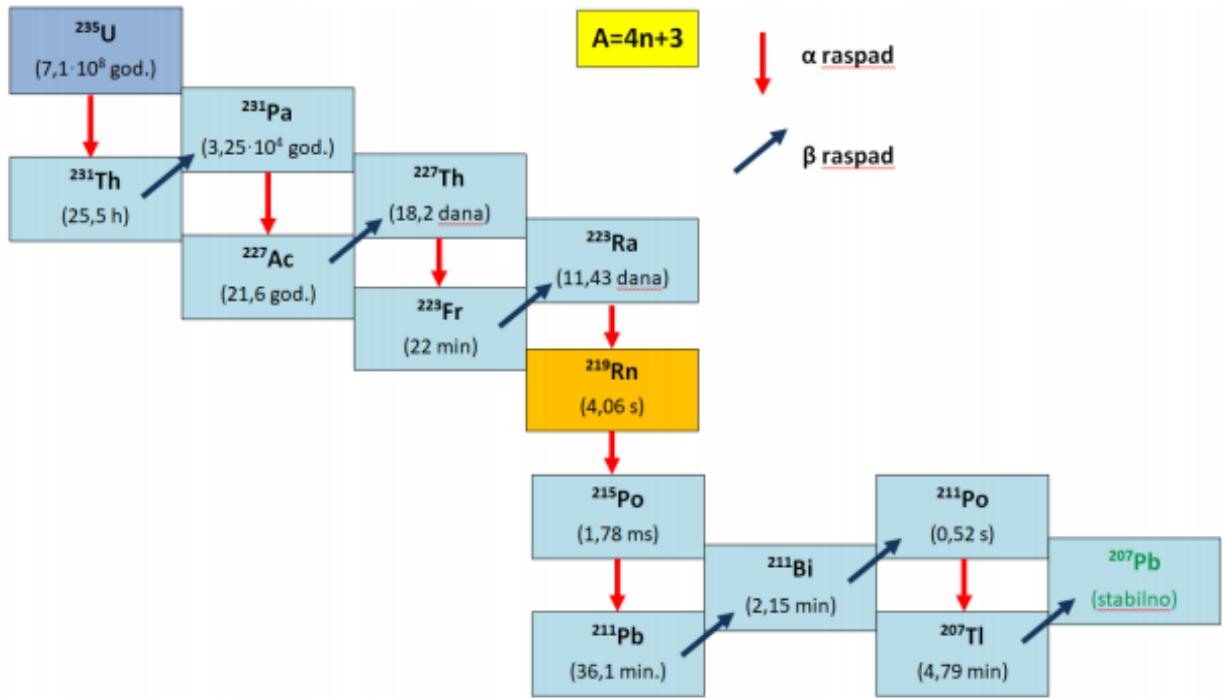
Izotop	$T_{1/2}$	Vrsta raspada i energija [MeV]
^{223}Ra	11.43(5) dana	α_3 5.745 (9.1%) α_4 5.714 (53.7%) α_5 5.605 (26%) α_6 5.538 (9.1%)
^{224}Ra	3.632(2) dana	α_0 5.685 (94.9%) α_1 5.449 (5.1%)
^{226}Ra	1600(7) godina	α_0 4.784 (94.55%) α_1 4.601 (5.45%)
^{228}Ra	5.75(3) godine	β^- 0.046



Slika 4.2. Prirodni radioaktivni niz ^{238}U [Todorović, Nikolov, Stojković 2018]



Slika 4.3. Prirodni radioaktivni niz ^{232}Th [Todorović, Nikolov, Stojković, 2020]



Slika 4.4. Prirodni radioaktivni niz ^{235}U [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

U radioaktivnim nizovima gdje se radioizotopi suksesivno raspadaju sve dok se ne dobije stabilni izotop, postavlja se problem određivanja aktivnosti pojedinih članova niza ukoliko je poznat period poluraspada posmatranog radionuklida. Pod sekularnom ravnotežom se podrazumijeva pojava kada se potomci brže raspadaju od predaka, pa poslije određenog vremena koje je duže od nekoliko perioda poluraspada potomka dolazi do uspostavljanja režima pri kojem aktivnosti svih članova u nizu postaju jednake aktivnosti rodonačelnika niza.

Određivanje ^{226}Ra u vodi se vrši preko njegovog radioaktivnog potomka ^{214}Bi koji ima period poluraspada $T_{1/2} = 19.9(4)\text{min}$ i kojem je dominantan β^- način raspada, emitujući pri tom beta čestice maksimalne energije 3.272 (11) MeV-a. Sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{226}Ra i ^{222}Rn se uspostavlja nakon 30 dana, dok se ravnoteža između ^{222}Rn i ^{214}Bi uspostavlja nakon nekih 3.5h. Tako da možemo reći da će se ravnoteža između ^{226}Ra i ^{214}Bi uspostaviti nakon otprilike 30 dana.

Obzirom da pripada grupi zemnoalkalnih metala očekivano je da pokazuje slične hemijske osobine kao i ostali elementi ove grupe (Sr, Ra, Mg, Ca, Ba), jer su svi oni prisutni u prirodi u oksidacionom stanju +2. Ponašanje radijuma je slično ponašanju barijum jer ova dva elementa imaju približne vrijednosti jonskog radijusa, i zbog toga ukoliko podaci o Ra nisu dosupni, može se koristiti Ba kao hemijski analog za predviđanje ponašanja Ra. Koncentracija radijuma u vodi kao i mobilnost radijuma kroz životnu sredinu kontrolisana je interakcijom sa površinama putem procesa adsorpcije preko jonske izmjene. Ovo se najčešće naziva koeficijentom koji je definisan sa:

$$K_d = \frac{\text{koncentracija u čvrstoj fazi}}{\text{koncentracija u rastvoru}} \quad (4.1)$$

Koncentracija u čvrstoj fazi je u sušini količina adsorbenta u ukupnoj masi čvrste faze (na primjer mol kg^{-1}), dok je koncentracija u rastvoru izražena u mol l^{-1} . Zbog toga je jedinica za K_d $[\text{l kg}^{-1}]$. Da bi se odredilo koliko se radijuma adsorbuje na određenoj lokaciji, neophodni su podaci za prirodne uzorce za različite površine i različite materijale, samim tim količina ^{226}Ra u vodi zavisiće i od sredine kroz koju voda prolazi. [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

Prisutnost u vodi i rizik

Voda je neophodna za život i zato je obezbijeđivanje dovoljne količine zdravstveno bezbjedne vode za piće osnovno ljudsko pravo. Pod zdravstvenom bezbjednošću vode za piće podrazumijeva se odsusvo mikrobioloških, fizičkih i hemijskih opasnosti koje mogu da uzrokuju nastanak oboljenja čovjeka. Opasnosti u vodi za piće se utvrđuju u cijelom lancu vodosnabdijevanja, počevši od izvora, preko tretmana do distribucije.

Najefikasniji način obezbijeđivanja zdravstvene bezbjednosti vode za piće desinisan je kroz analizu rizika (slika 4.5.).



Slika 4.1. Šematski prikaz analize rizika [Todorović, Nikolov, Stojković, Bijelović, Lučić, 2020]

Izvori radionuklida u vodi za piće mogu biti prirodni i antropogeni. U prirodne se ubrajaju zemljište i stijene, dok u vještačke spadaju rudnici, procesi ekstrakcije uglja, nafte i gasa, upotreba đubriva u poljoprivredi (posebno fosfatnih) i građevinska industrija. Radionuklidi uneseni u organizam se apsorbuju u krvi i akumuliraju u tkivima, pri čemu može doći do bioloških promjena. One mogu da budu prolazne, trajne ili letalne. Poznavanje interakcije ionizujućeg zračenja sa materijom je uslov za razumijevanje bioloških efekata zračenja i procjenu zdravstvenog rizika. Da bi ćelija živjela i normalno funkcionala potrebna joj je energija i voda. Ako voda ne zadovoljava propisane kriterijume za ukupnu alfa i beta aktivnost, može doći do mutacija na ćeliji. Najčešća posljedica je promjena ćelije, njene građe i funkcije. Vjerovatnoća pojave mutacija rasta sa povećanjem doze, pri čemu ne postoji sigurna količina doze ispod koje neće doći do posljedica. Rizik od pojave karcinoma varira zavisno od starosti u trenutku izloženosti, s tim da je veći rizik kod osoba koje su bile izložene zračenju kao djeca. Jedini način za smanjenje rizika je redovna kontrola radioaktivnosti vode.

Najveći doprinos ukupnoj dozi ionizujućeg zračenja koju primi stanovništvo daje ^{222}Rn , i procjenjeno je da inhalacija radona i njegovih potomaka koji se nalaze u povišenim koncentracijama u vodi za piće izaziva 89% kancera pluća. Ostali dugoživeći radionuklidi koji doprinose radijacionom riziku uslijed ingestie vode su radioizotopi ^{238}U , ^{234}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb i ^{210}Po . Svi oni su alfa emiteri, dok njihovi kratkoživeći potomci mogu da emituju beta i gama zračenja. Alfa i beta čestice imaju kratak domet i nisu u stanju da prodrnu duboko u tkivo. Zbog toga radijacioni rizik nastaje samo uslijed unosa vode koja ima povećanu količinu ovih radionuklida. Ukoliko voda sadrži ^{238}U , 66% unesenog uranijuma će se veoma brzo eliminisati putem urina, dok će preostalih 34% u bubrežima (12-25%), kostima (10-15%) i mekom tkivu. [Todorović, Nikolov, Stojković, Bijelović, Lučić, 2020]

Naziv radijum se najčešće odnosi na izotop ^{226}Ra koji je vrlo rasprostranjen prirodni radioaktivni izotop. Može se naći u zemljištu, mineralima, hrani, u površinskim kao i u podzemnim vodama, a i u predmetima opšte upotrebe. Sa aspekta radiološke štetnosti, radijum spada u najopasnije

dugoživeće alfa emitere u prirodi. Kao alkalni zemljani element, ako dospije u ljudski organizam, nakuplja se u skeletu čovjeka jer se ponaša slično kao Ca i samim tim ga ćelije u ljudskom organizmu ne prepoznaju, pa se može ugraditi u kosti umjesto kalcijuma. Najčešće se unosi u organizam putem hrane ili vode za piće. Udio ^{226}Ra iz vode je zanemarljiv ako je porijeklo vode za piće iz površinskih voda, dok u slučaju podzemnih voda za piće situacija može biti mnogo drugačija. Prema podacima UNESCAR-a iz 2000. godine, postoje prirodni izvori vode sa koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra većom od 40 Bq l^{-1} .

Koncentracija ^{226}Ra u podzemnim vodama može biti izuzetno visoka posebno ako je podzemna voda u kontaktu sa stijenama bogatim uranijumom, kao što su granit ili fosfat. Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u životnoj sredini su povećane aktivnostima čovjeka, najviše iskopavanjem i sagorijevanjem uglja i drugih goriva. Prilikom izlaganja ljudi povećenoj koncentraciji ^{226}Ra mogu se javiti efekti na zdravlje ljudi poput frakture zuba, anemije i katarakti, a pri dugoročnom izaganju, mogu se javiti i neke vrste kancera. Pokazano je da je stopa smrtnosti uslijed raka kostiju značajno povišena u mjestima gdje voda iz vodovoda sadrži viće od 110 Bq l^{-1} .

Smatralo se da primarni uticaj na zdravlje imaju ^{226}Ra i ^{228}Ra , a mnogo manje pažnje se posvećivalo kratkoživećem ^{224}Ra . Istraživanjima javnih izvora vode za piće u USA, došlo se do zaključka da i ^{224}Ra može značajno da doprinese povišenim koncentracijama aktivnosti alfa emitera, što dovodi do viših vrijednosti pri mjerenu ukupne alfa aktivnosti. ^{224}Ra često nije detektovan u uzorku vode poslije mjerena ukupne alfa aktivnosti, zbog njegovog kratkog perioda poluraspada. Budući da se uvijek prvo mjeri ukupna alfa aktivnost, pa ukoliko ima potrebe i ^{226}Ra , a zatim se sprovodne dodatne analize.

Mjerenje radijumovih izotopa često se koristi pri ispitivanju zagađenja životne sredine u okolini uranijumskih rudnika i iskopina, fabrika fosfora i rudnja uglja. [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

Zakonska regulativa

Zdravstvena bezbjednost vode za piće na internacionalnom nivou regulisana je preporukama SZO i Agencije za zaštitu životne sredine SAD-a (USEPA- United States Environment Protection Agency), direktivama Evropske Unije (EU) i nacionalnim propisima definisanim po državama (WHO, 2017; EPA, 2018; EC, 1998; EC, 2000; Sl. glasnik RS br. 41/2009 i 17/2011). U Republici Srbiji zdravstvena bezbjednost, odnosno ispravnost vode za piće definisana je u Zakonu o bezbjednosti hrane (Sl. glasnik RS br. 41/2009), a obzirom da se voda za piće smatra hranom, i u Zakonu o vodama (Sl. glasn. RS br. 30/2010, 93/2012, 101/2016) i Zakonu o javnom zdravlju (Sl. glasnik RS br. 15/2016), što je regulisano Pravilnikom o higijenskoj ispravnosti vode za piće (Sl. list SRJ 42/1998, 44/1999 i Sl. glasnik RS br. 28/2019). Monitoring zdravstvene ispravnosti vode za piće u Republici Srbiji je pod nadležnošću Ministarstva zdravlja, a sprovode ga instituti i zavodi za javno zdravlje u zemlji u skladu sa teritorijalnom nadležnošću.

Pomoću nuklearnih analitičkih tehnika, moguće je odrediti kvalitet pijačih voda sa stanovišta radioaktivnosti. Kontrola radioaktivnosti vode za piće u Republici Srbiji definisana je Pravilnikom o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lijekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet (Sl. glasnik RS br. 36/2018). Utvrđivanje radoaktivnosti vode za piće u Republici Srbiji mogu obavljati samo ovlašćene i akreditovane laboratorije, dok je evaluacija rezultata u nadležnosti Direktorata za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbjednost Srbije. U skladu sa Pravilnikom o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lijekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet (Sl. glasnik RS br. 36/2018), granice sadržaja radionuklida u vodi za piće određene su granicom izlaganja jonizujućim zračenjima, ukoliko nije drugačije određeno, i količinom vode koja se konzumira u toku godine, a jednake su izvedenim koncentracijama aktivnosti radionuklida u vodi za piće. Ukoliko su izmjerene vrijednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti vode za piće iznad propisanoh vrijednosti, obavlja se identifikacija i određivanje sadržaja pojedinačnih radionuklida. Voda za piće se ne može zabraniti za upotrebu na osnovu izmjerenih vrijednosti ukupne alfa i beta aktivnosti, ukoliko nije određen sadržaj pojedinačnih radionuklida. [Todorović, Nikolov, Stojković, Bijelović, Lučić, 2020]

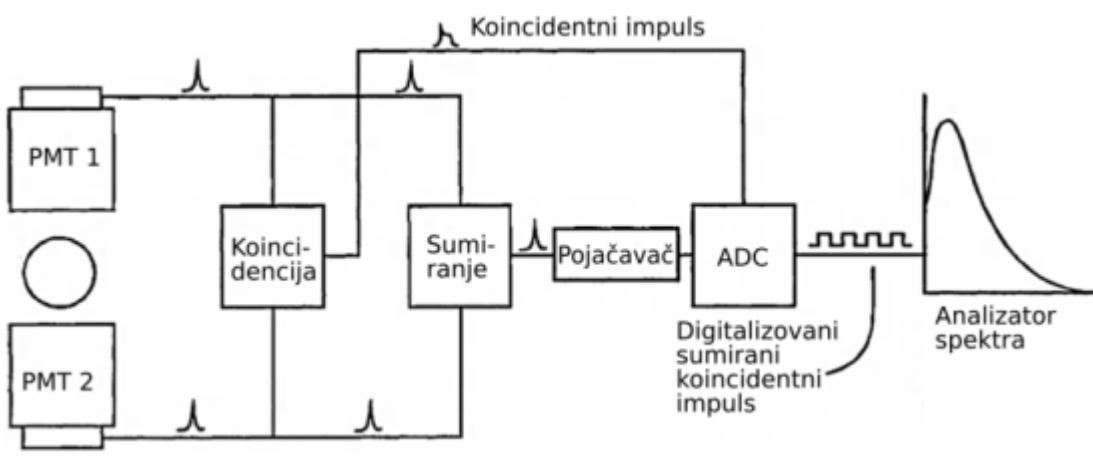
U preporuka Svjetske zdravstvene organizacije (WHO, 2011), kao i Evropske komisije (European Commission Directive, EC Directive, 2013) prepoznaju ^{226}Ra na listi radioizotopa koji se moraju mjeriti u vodi za piće ukoliko koncentracija ukupne alfa i beta aktivnosti pređe granicu od 0.5 Bq l^{-1} prema WHO preporukama, odnosno 0.1 Bq l^{-1} prema EC preporukama. Svjetska azdravstvena organizacija postavlja graničnu vrijednost za koncentraciju ^{226}Ra u vodi na 1 Bq l^{-1} (WHO 2017), dok je prema zakonskoj regulativi u Srbiji izvedena koncentracija (na osnovu doze od 0.1 mSv) od 0.5 Bq l^{-1} (Službeni glasnik RD 36/2018). Poželjna granica detekcije (MDA vrijednost) za metode koje se koriste za mjerjenje ^{226}Ra je prema EC preporukama 0.04 Bq l^{-1} . [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

5. LSC detektorski sistemi

LSC metode za određivanje radioaktivnosti zasnivaju se na pojavi fluorescentne emisije u rastvorima organskih jedinjenja prilikom izlaganja nuklearnoj radijaciji. Fluorescentnu svjetlost, koja je posljedica deekscitacije organskih molekula, moguće je prevesti u električne signale pomoću fotomultiplikatorskih cijevi. Tečni scintilacioni brojač, u osnovi se sastoji od scintilatora, fotomultiplikatora i elektronskog uređaja za pojačavanje i obradu signala.

Kako bi se detektovala i brojno odredila aktivnost nekog uzorka, uz zahtjev automatizacije mjerena sa većim brojem različitih mjernih protokola koje korisnik može da zada, tečni scintilacioni brojač mora da zadovolji sledeće uslove:

- Mogućnost detekcije svjetlosnih impulsa koji se emituju iz bočica, određivanje broja i intenziteta tih signala
- Mjerenje velikog broja uzoraka smještenih u mjerne bočice različitih zapremina (20 ml, 8 ml, 7 ml, 4 ml i Eppendorfovih cijevi)
- Automatizacija režima rada detektora: mjerenje više tipova uzoraka preko različitih mjernih protokola, tj. na različitim parametrima i uslovima brojanja tako da se u nekim uzorcima može mjeriti Čerenkovljevo zračenje, u drugim ukupna alfa/beta aktivnost, ili sadržaj ^{3}H ili ^{14}C .



Slika 5.1. Šematski dijagram komponenti jednostavnog tečnog scintilacionog analizatora. Krug između PMT 1 i PMT 2 predstavlja bočicu u kojoj je uzorak I scintilacioni koktel [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

Niskofonski tečni scintilacioni spektrometar Quantulus 1220TM

Niskofonskim tečnim scintilacionim spektrometrom Qualntulus 1220TM (*Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer Wallac 1220TM Quantulus*) mogu se ispitivati i veoma niski

nivoi radioaktivnosti, kao što su radioaktivnosti vještačkih, kosmičkih i drugih prirodnih radionuklida (slika 5.2.a).



Slika 5.2.(a) Quantulus 1220TM, (b) raspored uzoraka na tacnama u Quantulusu [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

Dimenziije detektora su $1.01 \times 1.56 \times 0.92 \text{ m}^3$ i mase oko 1000 kg. Koristi se za detektovanje α i β zračenja, Čerenkovljevog zračemka, X-zraka, Augerovih elektrona, luminescencije i γ zračenja. Quantulus 1220TM ima stabilnu i visoku efikasnost za detekciju α, β i niskoenergetskih β čestica, a takođe i nizak i stabilan nivo pozadinskog zračenja, pa je veoma pogodan za niskofonska mjerena i postizanje niskih granica detekcije

Obzirom da je Quantulus konstruisan od niskoaktivnih materijala, moguće je vršiti precizna mjerena niskih nivoa radioaktivnosti u okolini, kao i datiranje izotopa ^{14}C . Osnovne prednosti kvantulusa u odnosu na ostale tipove detektora su:

- Visoka stabilnost koja je karakteristična i tokom dugog vremena mjerena
- Napredno razdvajanje alfa i beta spektra, zahvaljujući klasifikaciji nezavisnih amplituda impulsa na osnovu njihovog oblika
- Pasivna atenuacija zračenja iz okoline, koju omogučava olovna zaštita sa dovoljno niskom radioaktivnošću, i aktivna zaštita od kosmičkog zračenja i zračenja sredine, koja spriječava gubitke u efikasnosti detekcije (čini je zaštitini detektor scintilator na bazi mineralnog ulja, dvije dodatne PMT cijevi koje radi u antikoincidenciji, i okružuju komoru sa uzorkom i sistem od dvije PMT cijevi)

U cilju što boljeg i tačnijeg mjerena niskih aktivnosti, reći ćemo nešto o optimizaciji uslova mjerena kod Quantulusa, koju omogućuju sofisticirane metode redukcije pozadinskih efekata, mjerena koje se zasniva na tehnologiji višekanalnih analizatora, fleksibilno vrijeme mjerena, sposobnost smanjenja elektronskog šuma i velik kapacitet smještanja i obrade podataka u memoriji računara.

Detektor mora biti povezan sa računarom, kako bi se podaci dobijeni brojanjem uzorka unutar mjerne komore smještali u njegovu memoriju. Rad Quantulusa se u suštini kontroliše kompjuterskim softverom WinQ, a analiza spektara se vrši u programu EasyView. Za svaki uzorak koji mjerimo, dobija se informacija o odbroju, prikaz generisanog spektra unutar 1024

kanala, ID uzorka, vrijeme mjerena i neke dodatne informacije koje korisnik može da traži tokom mjerena, kao što je na primjer indikator nivoa prigušenja uzorka.

Maksimalna zapremina uzorka koja može da se mjeri pomoću Quantulusa je 20 ml. Fleksibilno rukovanje uzorcima omogućuju tri, programski kontrolisana, matrična niza 4×5 za uzorke (tri tacne na koje se postavljaju uzorci prikazane su na slici 5.2.b). Uzorci se obično mjeru u ciklusima po nekoliko puta, uz to da slobodno biramo protokol i redoslijed mjerena, a na kraju mjerena se određuje srednja vrijednost odbroja. Moguće je i zadati različito vrijeme mjerena posebno za svaki uzorak. Često se u praksi pored nepoznatih uzoranja, mejre i kalibracioni i neaktivni uzorci (*blank*). Ovo se radi u cilju provjeravanja efikasnosti i pozadinskog zračenja tokom mjerena nepoznatih uzoraka, što omogućuje praćenje stabilnosti i uzorka i instrumenta, kao i detekciju eventualnih varijacija pozadinskih efekata. Sve ovo nam mjerena čini još pouzdanim. Takođe je moguće rad pod ekstremnim ili promjenljivim uslovima, obzirom da je unutrašnjost instrumenta na konstantnoj temperaturi u okviru 12°C razlike u odnosu na okolinu. Hlađenje se vrši pomoću četiri elektronski bešumna Peltierova elementa, a može se i poboljšati uvođenjem cirkulacije vode. [Todorović, Nikолов, Stojković, 2018]

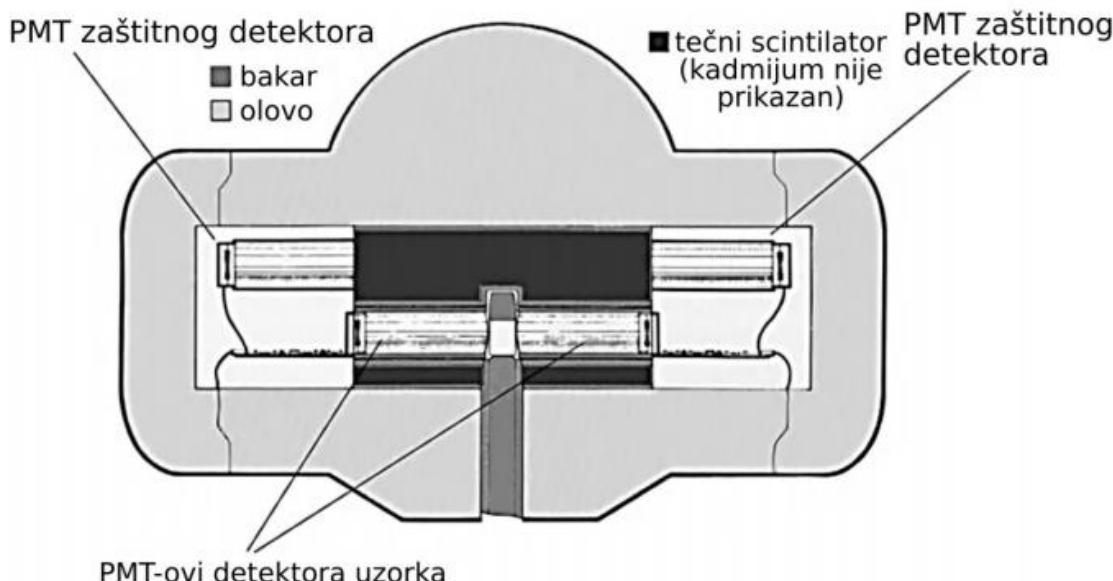
Detektorska zaštita

U cilju postizanja što niže granice detekcije, merni instrument mora da bude stabila i ako su dugi periodi brojanja, a pozadinski efekti moraju biti što više smanjeni. Veoma niski nivoi pozadinskog zračenja Quantulus-a, mogu se uporebiti sa nivoima koji se postižu na instrumentima u podzemnim laboratorijama. Razlog ovom je sistem redukcije pozadinskog zračenja Quantulus-a koji se sastoji od pasivne i aktivne zaštite.

Pasivna zaštita sastoji se nekoliko slojeva:

1. Masivne asimetrične olovne zaštite koja zaustavlja veći dio γ zračenja iz okoline i meku mionsku komponentu kosmičkog zračenja
2. Posjeduje sloj bakra koji apsorbuje X zračenje i
3. Sloj kadmijuma koji apsorbuje termalne neutrone koji nastaju u olovu interakcijom kosmičkih zraka.

Olovna zastita je mase 630 kg, najdeblji dio koji je debljine 20cm, nalazi se direktno iznad komore za mjerena, jer je na tom dijelu intenzitet kosmičkog zračenja najveći, kod zračenja sa donje strane atenuira zaštita od 15cm, a bočne strane su zaštićene olovom debljine 7-11 cm. Pasivna zaštita ne uklanja tvrdu mionsku komponentu kosmičkog zračenja, kao ni visokoenergetsko γ zračenje.



Slika 5.3. Šema detektorske komore sa pasivnom i aktivnom zaštitom [L'Annunziata 2012]

Aktivna zaštita zasnovana je na scintilatoru na bazi mineralnog ulja i predstavlja veto detektor. Ona služi za uklanjanje prirodnih fluktuacija koje potiču od pozadinskih efekata. Otklanja signale koji potiču od uzorka, a porijeklom su od γ zraka iz okoline. Takođe otklanja i 100% miona energija reda veličine GeV-a, čiji fluks može varirati sa promjenom atmosferskog pritiska i vlastnosti vazduha i zato pri dužim mjeranjima nema potrebe za korekcijom atmosferskog pritiska u Quantulusu.

Aktivnu zaštitu čini asimetrični štit sa tečnim scintilatorom, odnosno cilindar u čijoj cijevi je postavljen veto detektor aktivne zaštite, tečni scintilator koji okružuje dvije PMT cijevi. Debljina scintilatora je najveća iznad komore za mjerjenje i fotomultiplikatorskih cijevi. Scintilacije koje potiču od aktivnog elemnta zaštite (tečnog scintiatora koji je na bazi mineralnog ulja) registriraju dva dodatna PMT-a.

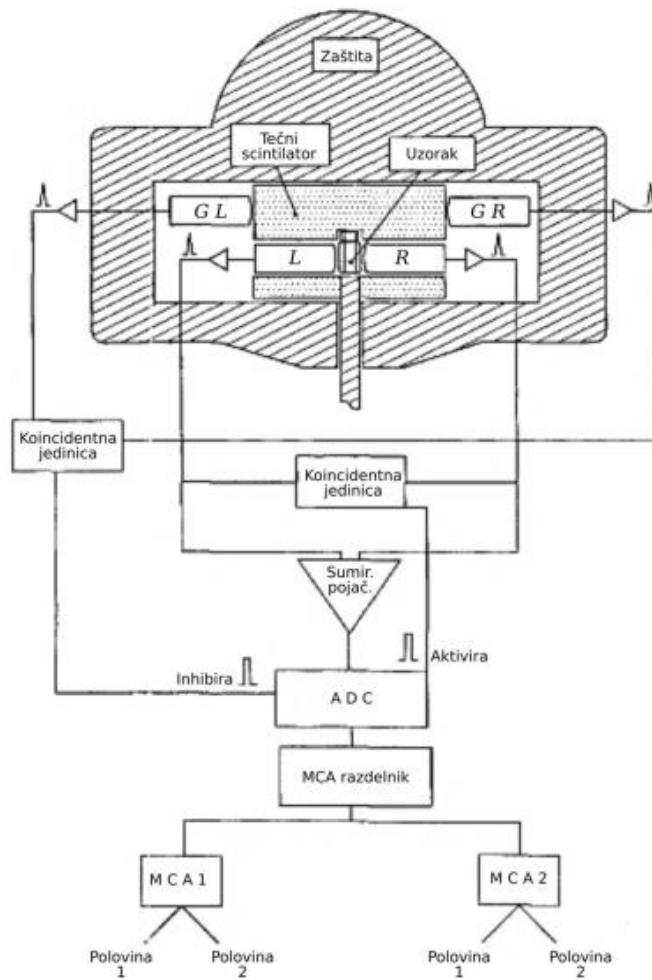
Detektor uzorka, tj dva fotomultiplikatora oko uzorka, rade u antikoincidenciji sa zaštitnim veto detektorom, odnosno sa dva fotomultiplikatora oko aktivne zaštite.

Čestiće kosmičkog zračenja više energije mogu da izazovu Čerenkovljevo zračenje u staklu PMT-a. Da bi izbjegli prihvatanje ovih signala u instrumentu, aktivna zaštita takođe okružuje PMT cijevi koje su oko komore sa uzorkom. Ukoliko ionizujuće zračenje stvori ekscitovane atome i molekule prilikom prolaska kroz detektor, oni u aktivnoj zaštiti izazivaju scintilacije koje se mogu detektovati i u PMT cijevima oko uzorka. Impuls u zaštitnom detektoru aktivira logički signal. Ako je signal iz detektora uzorka u koincidenciji sa impulsom koji registruju dvije PMT cijevi oko aktivne zaštite, to se može iskoristiti na dva načina:

- Da se spriječi A/D konverzija impulsa (analognog u digitalni signal)
- Da se izabere druga polovina memorije višekanalnog analizatora i omogući da konvertovani impuls bude smješten u drugog dijelu (Half 2) MCA, čineći spektar pozadinskog zračenja.

Funkcionisanje aktivne zaštite i monitoring intenziteta pozadinskog zračenja u toku mjerenja mogu se uspostaviti primjenom dvije metode:

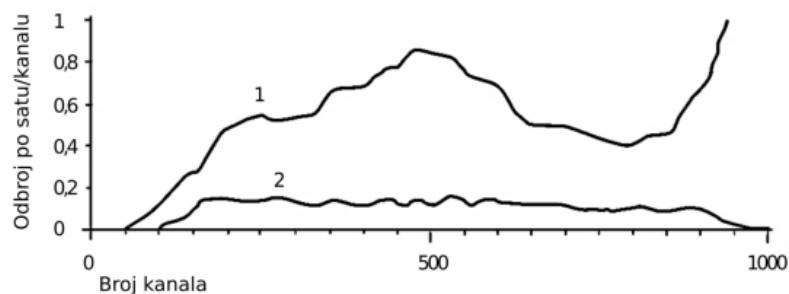
1. MCA 2 (drugi višekanalni analizator) mjeri energetski spektar pozadinskog zračenja u zaštiti. Konfiguracija MCA 2 može se postaviti tako da drugi dio (Half 2) ovog analizatora mjeri impulse iz PMT-a oko uzorka, koji su u koincidenciji sa impulsima detektora iz aktivne zaštite, dok se u prvom dijelu (Half 1) mjeru svi ostali antikoincidentni impulsi.
2. Ako se koristi logički signal iz zaštite kao memorijski podijeljen signal za prvi dualni višekanalni analizator MCA 1 (slika 5.4.), njegov prvi dio (Half 1) će sadržati spektar uzorka u antikoincidenciji sa zaštitom (prihvatiće odbroje iz uzorka), a drugi dio (Half 2) će sadržati spektar impulsa iz detektora aktivne zaštite koji su u koincidenciji sa zaštitom.



Slika 5.4. Uloga višekanalnog analizatora MCA 1 u aktivnoj antikoincidentnoj zaštiti [Vaca et al, 1998]

Aktivna zaštita smanjuje pozadinke efekte bez gubitka efikasnosti detekcije, a obezbjeđuje odlične rezultate čak i u području sa značajnom aktivnošću u okruženju (na primjer, u okolini Černobila). Osnovni napredak tehnike primjenjene na Quantulusu za koincidentno brojanje događaja je u tome što omogućuje izolaciju između zaštitnog veta detektora i detektora uzorka.

Ovo znači da kvalitet uzorka i scintilatora ne utiče na uspješnost smanjenja pozadinskog zračenja, jer signal koji potiče od samog uzorka ne prodire u zaštitni detektor.



Slika 5.5. Nivoi pozadinskog zračenja u Quantulusu bez aktivne zaštite (1) i sa aktivnom zaštitom (2)
[Todorović, Nikolov, Stojković 2018]

6. Metode za određivanje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u vodi

Postoji više metoda kojima se može odrediti kolicina radijuma u uzorcima vode kao što su:

- Alfa spektrometrija
- Gama spektrometrija
- Masena spektrometrija
- LSC metoda

Radioizotopi ^{223}Ra , ^{224}Ra i ^{226}Ra su alfa emiteri i mogu se direktno mjeriti alfa spektrometrijom. ^{228}Ra je beta emiter i on se može indirektno mjeriti alfa spektrometrijom preko svog potomka ^{228}Th . Međutim, kako je period poluraspada ^{228}Th je $T_{1/2} = 1,91$ godina, alfa spektrometrija nije adekvatna metoda za mjerjenje ovog radijumovog izotopa.

Gama spektrometrija je veoma korisna metoda za određivanje količine radijuma u vodi. Ona omogućuje istovremeno određivanje nekoliko radionuklida u uzorku, bez komplikovane pripreme uzorka (dugotrajne radiohemijske separacije) kao što je to slučaj kod alfa spektrometrije. Mana ove metode je slaba vjerovatnoća emisije za neke korisne emisione linije. Takođe je relativno loša efikasnost High Purity Germanium (HPGe) detektora za široke intervale energije, i teško ga je precizno kalibrirati, a tu je i potreba da se procjene samoapsorpcioni efekti.

Masena spektroskopija se koristila za određivanje ^{226}Ra i ^{228}Ra , mada se mjerjenje ^{228}Ra ovom metodom pojavljuje samo u nekoliko radova jer je period poluraspada ovog radijumovog izotopa, relativno kratak $T_{1/2} = 5.75$ godina. Glavne prednosti metoda masene spektroskopije su visoka osjetljivost i kratka vremena mjerjenja, iako je radiohemijska prekoncentracija i separacija uzorka obično neizbjegljiva. Osnovni problem masene spektrometrije je formiranje izobara (raličitih elemenata, istog masenog broja), kao i nastanak višestruko naelektrisanih jona.

LSC (*Liquid scintillation counting*) metode su najčešće korišćene za određivanje radijuma u uzorcima iz okoline, posebno u tečnostima. One obezbeđuju veliku količinu uzorka, prihvatljivu granicu detekcije za nekoliko radijumovih izotopa. Procesi kojima se smanjuje intenzitet fluorescencije, loša energetska rezolucija i relativno visoko pozadinsko zračenje, pogotovo u poređenju sa alfaspektroskopijom, neka su od ograničenja ove metode. [IAEA 2014.]

LSC metoda uz pravilno podešavanje alfa/beta separacije (vrši se pomoću podešavanja PSA (*Pulse Shape Analysis*) parametra) najčešće je korišćena tehnika za određivanje ^{226}Ra u vodi. Razlog ovome je visoka efikasnost detekcije, prilično jednostavne pripreme uzorka i automatskog mjerjenja uzorka. Minimalne detekcione aktivnosti koje se mogu dostići su od 0.3 do 1.4 mBq l^{-1} za mjerenu u trajanju od 6 sati.

Praksa je pokazala da će bilo koja metoda za mjerjenje ^{222}Rn takođe biti pogodna i za mjerjenje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u vodi. Mjerjenje ^{226}Ra u vodi LSC metodom je pravi primjer sekularne radioaktivne ravnoteže. Ako bi pripremljeni uzorak bio ostavljen da stoji ~ 30 -tak dana, ^{222}Rn bi ušao u ravnotežu sa ^{226}Ra i dobijena izmjerena koncentracija bi bila koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u uzorku. Vecina LSC metoda podrazumevaju miješanje uzorka sa scintilacionim koktelom. Prije mjerjenje bitno je da uzorak stoji mjesec dana na tamnom mjestu

i konstantnoj temperaturi, a idealno za to je da uzorak stoji u samom scintilacionom detektoru. Prije samog mjerena, uzorak ne treba ponovo mučkati, tj uzorak vode koji sadrži ^{226}Ra može se direktno pomiješati sa scintilacionim koktelom. Kada se koristi dvofazna metoda, voda koja sadrži ^{226}Ra stoji u mjernoj bočici ispod organskog koktela i samo će se ^{222}Rn koji nastane prebaciti u scntilacioni koktel gdje će ostati zarobljen. Ova metoda se obično koristi za monitoring ^{226}Ra u vodi za piće i mineralnim vodama jer je njena minimalna aktivnost koja može da se detektuje $5\text{-}60 \text{ mBq l}^{-1}$ što je manje od granice propisane zakonom.

Postoje i neki drugi načini mjerena koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u vodi, poput direktnog mjerena koncentracija ^{226}Ra , ^{224}Ra i ^{228}Ra u uzorcima bez upotrebe standarda. Ova metoda se zasniva na separaciji izmjereneh alfa i beta intenziteta u talogu $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ na tečnom scintilacionom detektoru u dva vremenska intervala, nakon jednog dana i nakon sedam dana.

Postoje i metode za simultano mjerene ^{226}Ra i ^{228}Ra u vodi uz upotrebu metoda hemijske separacije i niskofonskog tečnog scintilacionog detektora. Ove metode zahtijevaju podešavanje dva prozora sa različitim energijama i da se pažljivo podesi alfa/beta separacija, tj niskoenergetski prozor za direktno mjerene koncentracije ^{228}Ra i visokoenergetski prozor za mjerene alfai beta emisije iz ^{226}Ra i njegovih potomaka. Ova metoda zahtijeva veoma pažljivu kalibraciju detekcionog sistema i detaljan postupak validacije. [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

7. Eksperiment

Da bi se ^{226}Ra detektovao preko Čerenkovljevog zračenja na Quantulus-u, potrebno je ručno podešiti protokol mjerena u višekanalnim analizatorima MCA 1 i MCA 2. Konfiguracija u WinQ programu prikazana je u tabeli. Događaji koji su porijeklom od Čerenkovljevog zračenja generisanog u uzorku nalaziće se u spektru SP11, dok su SP21 i SP22 takođe dostupni u programu EasyView radi kontrole rada zaštitnog detektora u Quantulus-u. S obzirom da su događaji Čerenkovljevog zračenja visokih amplituda, treba podešiti i *coincidence bias - high*. Ispod tabele su data objašnjenja podešenog protokola mjerena.

Tabela 7.1. WinQ konfiguracija za detekciju Čerenkovljevog zračenja na Quantulusu

	ADC Input	ADC Trigger	Inhibit	Memory Split
MCA 1	LRSUM	L*R	G	N
MCA 2	LRSUM	L*R	N	G

Input – selekcija analognih impulsa koji će biti konvertovani

LRSUM – left and right pulses summed (=L+R), sumirani signali iz lijevog i desnog fotomultiplikatora

A/D conversion Trigger pulse – logički signal koji će izvršiti A/D konverziju

L*R – left and right detectors in coincidence, lijevi i desni fotomultiplikator u koincidenciji

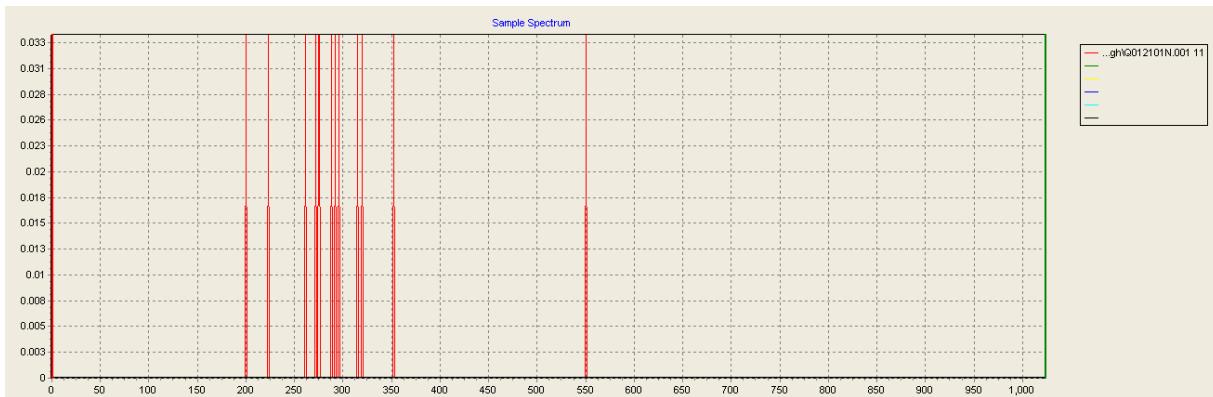
Conversion inhibit pulse – impulsi čija je konverzija zabranjena

G – guard pulse, signali iz zaštitnog detektora, N – no inhibit pulse, nema zabranjenih signala

Memory split selection (selection of MCA half for converted pulse) – logički uslov koji usmjerava konvertovani impuls u 1. ili 2. polovinu MCA

N – Half 1 always, uvek 1. Polovina MCA, G – Guard pulse, signali iz zaštitnog detektora.
[Stojković, 2015]

U ovom eksperimentu se određuje količina ^{226}Ra u vodi detekcijom Čerenkovljevog zračenja. Eksperiment je vršen pomoću tečnog scintilacionog spektrometra Quantulus 1220TM koji je opisan u poglavlju 5. Mjerenje se vrši bez upotrebe scintilacionog koktela, a analiza dobijenih spektara se radi u programu EasyView. Prednosti ove metode su jednostavnost izvođenja, kao i to što nema prethodne pripreme uzoraka. Ovom metodom se lako mogu eliminisati radionuklidi koji emituju alfa i niskoenergetsko beta zračenje, jer ne mogu da generišu Čerenkovljevo zračenje, pa neće biti interferencije sa spektrom ^{226}Ra . Nedostatak metode je taj što se ne možemo razlikovati radioizotop ^{226}Ra od radioizotopa ^{228}Ra . Takođe, ako se u uzorku nalaze neki drugi radionuklidi koji mogu da izazovu Čerenkovljevo zračenje interferiraće u spektru ^{226}Ra .



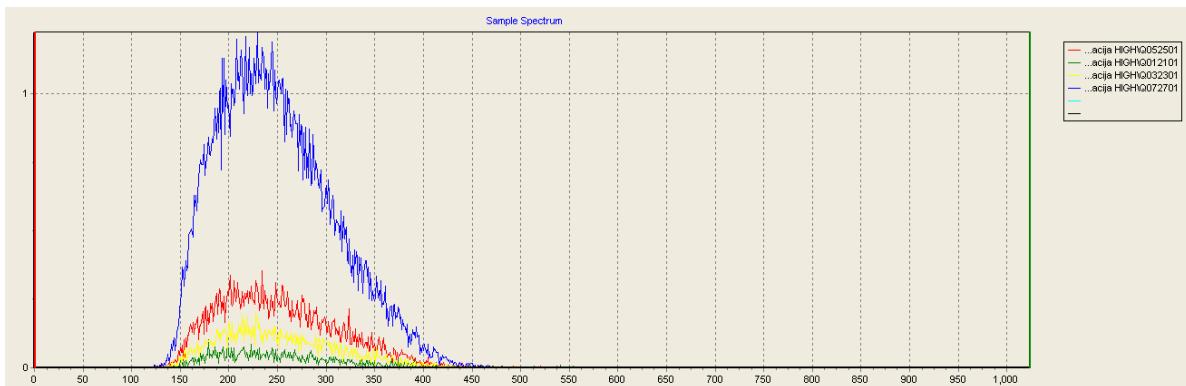
Slika 7.1 Prikaz spectra neaktivnog uzorka (blank-a)

Na slici 7.1. je prikazan primjer spektra neaktivnog uzorka (blank). U eksperimentu smo neaktivnan uzorak mjerili 10 puta, sa različitim vremenima mjerena, jer će se MDA (*Minimum Detectable Activity*) mijenjati u zavisnosti od dužine mjerena. Najkraće mjereno bla je 3516 s (oko 59 min), a jaduže 58586 s (oko 976 min).

Standard koji se koristi u eksperimentu je sledećih specifikacija:

Tabela 7.2. Specifikacije ^{226}Ra u laboratoriji Prirodno-matematičkog fakulteta, Univerziteta u Novom Sadu

Porijeklo	Czech Metrology Institute (Inspectorate for Ionizing Radiation)
Radionuklid	^{226}Ra
Masa ^{226}Ra	271,1 ng
Period poluraspada	584300 godina
Masa rastvora	250g
Koncentracija ^{226}Ra	1.0844 ng/g
Aktivnost	39,67 Bq/l (01.10.2013.)
Standardna devijacija	0.5%
Referentni datum	01.10.2013.
Hemski sastav	1 g BaCl ₂ /l + 1 g HCl/l



Slika 7.2. Prikaz spectra četiri poznata aktivna uzorka sa rastućom koncentracijom ^{226}Ra

U eksperimentu je korišćeno 5 uzoraka različitih aktivnosti i to:

1. Uzorak koji sadrži $20\mu l$ standarda, aktivnosti $A_1 = 0.7934 \text{ Bq}$
2. Uzorak koji sadrži $50\mu l$ standarda, aktivnosti $A_2 = 1.9835 \text{ Bq}$
3. Uzorak koji sadrži $100\mu l$ standarda, aktivnosti $A_3 = 3.967 \text{ Bq}$
4. Uzorak koji sadrži $400\mu l$ standarda, aktivnosti $A_4 = 15.868 \text{ Bq}$ i najaktivniji
5. Uzorak koji sadrži $1ml$ standarda, aktivnosti $A_5 = 39.67 \text{ Bq}$

Na slici 7.2. su prikazani spektri prva četiri navedena uzorka. Najaktivniji je izostavljen iz razloga jer bi ostali spektro bili jako loše vidljivi.

Podešavanje optimalnog prozora

Optimalni prozor podešavamo na sledeći način:

Mijenjamo intervale kanala (prozore) za jedan aktivni uzorak i jedan blank (blank biramo sa malo dužim vremenom mjerjenja jer će tada minimalna granica detekcije biti manja) i posmatramo šta se dešava sa FOM-om. FOM (*Figure of Merit*) predstavlja parametar koji određuje kvalitet metode mjerjenja za izabrani dio spektra. Najoptimalniji prozor će biti onaj sa maksimalnom vrijednošću FOM parametra.

Izraz za izračunavanje FOM-a je definisan sa:

$$FOM = \frac{\varepsilon^2}{r_0} \quad (7.1)$$

Gdje je ε efikasnost koja se dobija iz izraza:

$$\varepsilon = \frac{r_s - r_0}{A_{stand}} \quad (7.2)$$

U izrazu (7.2) r_s i r_0 su odbroji aktivnog uzorka i blanka, respektivno, a A_{stand} aktivnost određenog uzorka.

Tabela 7.3. Tabela podešavanja optimalnog prozora

Broj kanala	$r_0 [s^{-1}]$	$r_s [s^{-1}]$	ε	MDA [Bq/l]	FOM [cps^{-1}]
1-1024	0.0070(5)	6.086(23)	0.1530(10)	0.815(6)	3.4(5)
110-550	0.0070(5)	6.086(23)	0.1530(10)	0.815(6)	3.4(5)
120-500	0.0070(5)	6.085(23)	0.1530(10)	0.815(6)	3.3(5)
130-450	0.0070(5)	6.080(23)	0.1530(10)	0.816(6)	3.3(5)
130-430	0.0070(5)	6.068(23)	0.1530(10)	0.818(6)	3.3(5)
130-420	0.0070(5)	6.055(23)	0.1520(10)	0.820(6)	3.3(5)
130-410	0.0070(5)	6.037(23)	0.1520(10)	0.822(6)	3.3(5)
130-400	0.0070(5)	6.009(23)	0.1510(10)	0.826(6)	3.3(5)
135-390	0.0060(5)	5.964(23)	0.1500(10)	0.773(6)	3.8(5)
140-380	0.0060(5)	5.889(22)	0.1480(10)	0.783(6)	3.7(5)
150-360	0.0060(5)	5.684(22)	0.1430(10)	0.811(6)	3.4(5)
160-360	0.0060(5)	5.568(22)	0.1400(10)	0.828(6)	3.(3)
170-350	0.0060(5)	5.244(21)	0.1320(10)	0.879(6)	2.9(3)
180-340	0.0060(5)	4.822(20)	0.1210(10)	0.876(6)	2.9(5)

Sa smanjenjem prozora, MDA se takođe smanjuje, što je poželjno, jer granica detekcije treba da bude što manja. Međutim, sužavanjem prozora se i efikasnost detekcije smanjuje, a ona treba da bude što veća. Iz ovog razloza biramo FOM tako da ima maksimalnu moguću vrijednost, kao i efikasnost, uz neki minimalan nivo pozadinskog zračenja.

Iz tabele se vidi da je optimalan prozor za interval kanala od 135 do 390.

MDA (Minimum Detectable Activity)

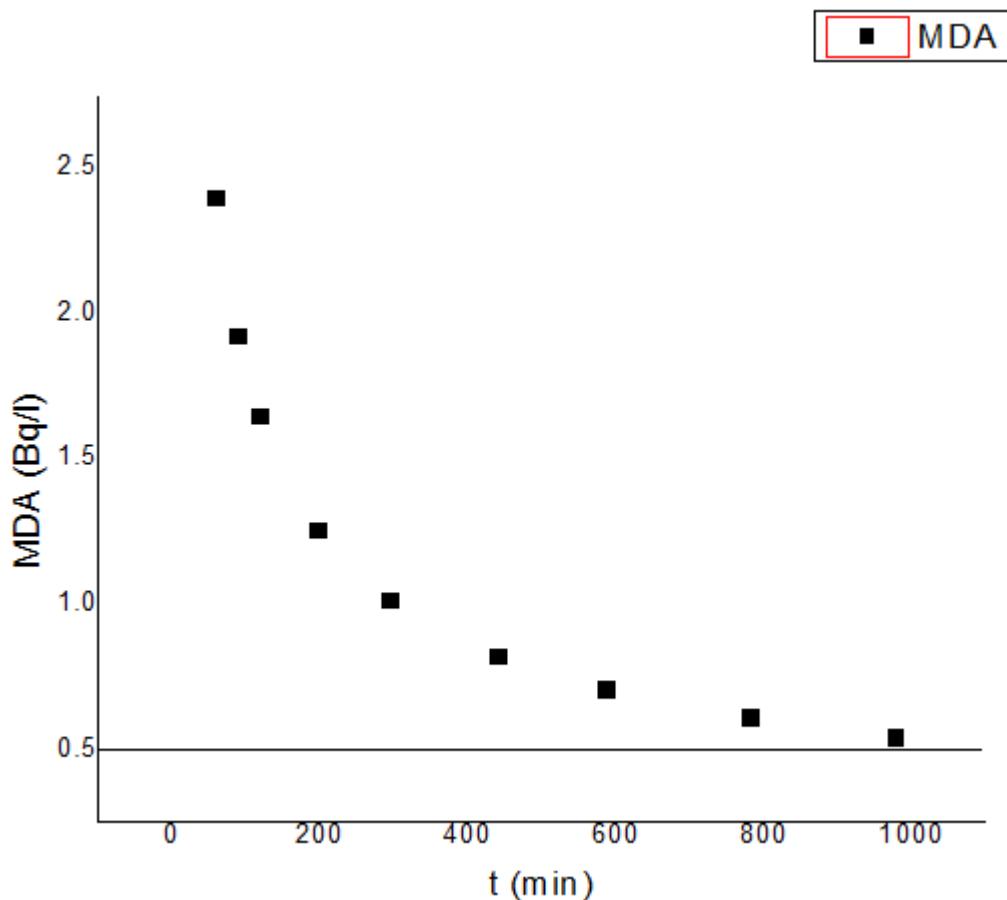
U nastavku eksperimenta ćemo vidjeti kako se mijenja minimalna granica detekcije (MDA) u odnosu na vrijeme mjerena neaktivnog uzorka (blank-a). Izraz kojim se određuje MDA, dat je izrazom:

$$MDA = \frac{2.71 + 4.65 \cdot \sqrt{r_0 \cdot t_0}}{V \cdot \varepsilon \cdot t_0} \quad (7.3)$$

U izrazu (7.3) t_0 predstavlja vrijeme mjerena neaktivnog uzorka, dok je V je njegova zapremina, što je $V = 20 ml$.

Sa grafika koji je prikazan na slici 7.3. može se vidjeti kako MDA opada sa povećanjem vremena mjerena blank-a.

Kako zakonski dozvoljena koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u vodi, u Srbiji, ne smije prelaziti vrijednost od 0.5 Bq/l, možemo zaključiti da za oredživanje koncentracije ^{226}Ra u vodi koja bi bila zakonski prihvatljiva, metodom korišćenom u ovom eksperimentu, mjerena moraju da se vrše bar oko 1000 min. Vidimo za za vrijeme mjerena od oko 1000 min, minimalna aktivnost detekcije je oko 0.5 Bq/l.



Slika 7.3. Grafik zavisnosti MDA parametra od vremena mjerena neaktivnog uzorka

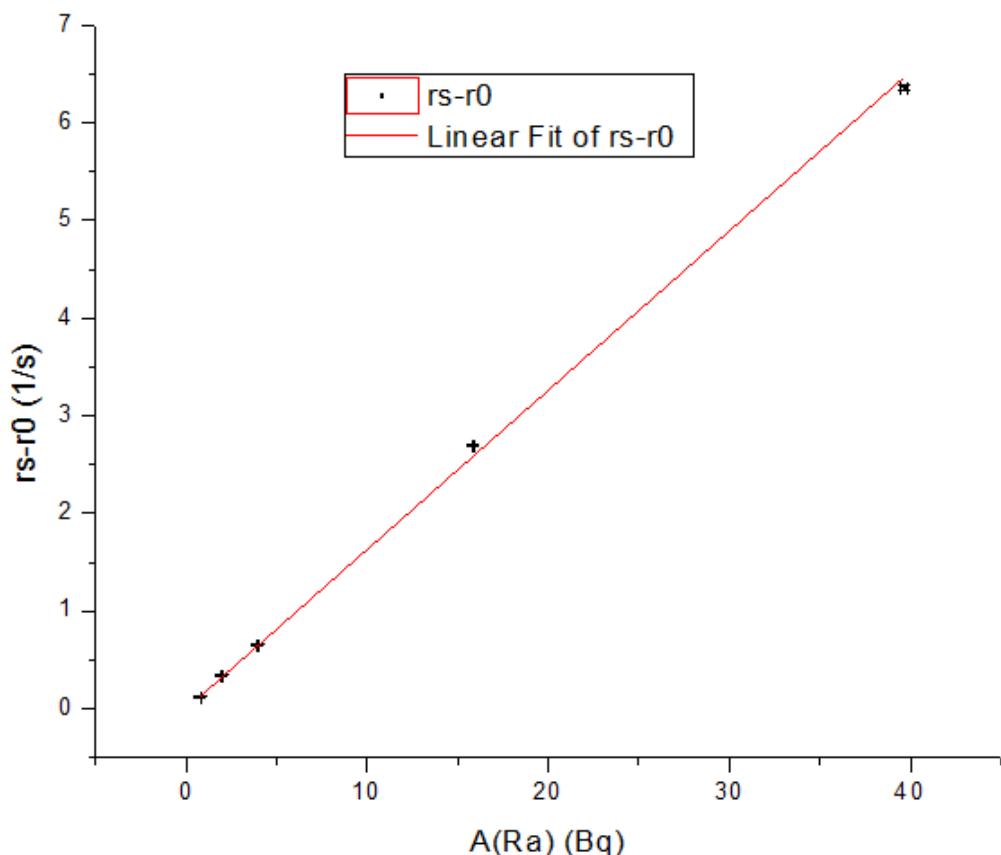
Kalibracija

Za mjerene aktivnosti nekog uzorka vode, scintilacioni brojač se mora kalibrirati. To radimo tako što mjerimo efikasnost detekcije u regionu od interesa.

Pripremljen je set uzoraka sa poznatim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra , tačnije 5 različitih uzoraka sa rastućom koncentracijom Ra, dok je svaki uzorak stavljen u dvije probe i mjerena na detektoru sa po tri repeticije.

Efikasnost predstavlja koeficijent pravca pravca sa grafika prikazanog na slici 7.4., ukoliko se na x-osi prikažu spajkovane aktivnosti ^{226}Ra , a na y-osi dobijeni odbroji, uz zahtjev da prava prolazi kroz koordinatni početak.

Dobijamo da je efikasnost $\varepsilon = 0.16306 \pm 0.00005$, odnosno $\varepsilon = 16.31 \pm 0.05\%$, što se može vidjeti iz tabele 7.4.



Slika 7.4. Grafik zavisnosti dobjenih odbroja od spajkovanih aktivnosti ^{226}Ra , u cilju dobijanja efikasnosti

Tabela 7.4. Pomoću informacija o jednačini prave sa slike 7.4. dobili smo vrijednost efikasnosti

Equation	$y = a + b*x$		
Adj. R-Square	0.99905		
		Value	Standard Error
rs-r0	Intercept	0	--
rs-r0	Slope	0.16306	4.68903E-4

Validacija metode

Da li je neka metoda validna za određenja ispitivanja određujemo pomoću parametra Z-score, koji dobija na sledeći način:

$$Z_{score} = \frac{A_{izm} - A_{ref}}{\sigma_{A_{izm}}} \quad (7.4)$$

U izrazu (7.4) A_{izm} predstavlja izmjerenu aktivnost, a A_{ref} referentnu (pravu) aktivnost, dok je $\sigma_{A_{izm}}$ standardna devijacija dobijene vrijednosti za A_{izm} .

A_{izm} se dobija na sledeći način:

$$A_{izm} = \frac{r_{uzorka} - r_0}{\varepsilon \cdot V} \quad (7.5)$$

U cilju provjere pouzdanosti i preciznosti metode, pripremljena su dva uzorka sa poznatim spajkovanim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra i dobijeni odbroji za ova dva mjerena uzorka su:

1. $r_{uz} = 0.011 \pm 0.0008 \text{ cps}^{-1}$
2. $r_{uz} = 0.038 \pm 0.0015 \text{ cps}^{-1}$

Relativnu grešku mjenenog uzorka, dobijamo na sledeći način:

$$\sigma_{A_{izm}} = \sqrt{\left(\frac{\partial A_{izm}}{\partial r_{uz}} \sigma_{r_{uz}}\right)^2 + \left(\frac{\partial A_{izm}}{\partial r_0} \sigma_{r_0}\right)^2 + \left(\frac{\partial A_{izm}}{\partial \varepsilon} \sigma_{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\partial A_{izm}}{\partial V} \sigma_V\right)^2} \quad (7.6)$$

Gde su $\sigma_V = 10 \mu\text{l}$, a σ_{ε} i σ_{r_0} standardne devijacije (greške mjerena) zapremine, efikasnosti i odbroja neaktivnog uzorka, respektivno, a uzimamo ih iz predhodnog računa.

Da bi metoda funkcionala Z-score treba da bude što manji i da teži nuli, a to se smatra kada se Z-score nalazi između -2 i 2.

Tabela 7.5. Validacija metode

A_{ref}	$\sigma_{A_{ref}}$	A_{izm}	$\sigma_{A_{izm}}$	Z-score
1.587	0.008	1.2	0.4	-0.91719
9.92	0.05	9.5	0.6	-0.74783

Iz tabele vidimo da je Z-score dovoljno mali da možemo smatrati našu metodu validnom.

8. Zaključak

Nakon izvršenih mjerjenja koncentracije aktivnosti radioizotopa ^{226}Ra u uzorcima vode, dobijamo da se korišćenom metodom može dobiti minimalna granica detekcije (MDA) manja od 0.5 Bq l^{-1} , za mjerena koja se vrše duže od 1000 mim. Detekcija radijuma putem Čerenkovljevog zračenja na Quantulusu može se izvesti sa efikasnošću detekcije od 16.31 (5) %. Takođe, mjerenjem na uzorcima spajkovanim referentnim materijalom (standardom ^{226}Ra poznate aktivnosti), ova metoda je pokazala zadovoljavajući tačnost i preciznost.

Metoda detekcije Čerenkovljevog zračenja je veoma pogodna za rad, kako zbog svoje jednostavnosti jer ne zahtijeva nikakvu pripremu uzorka, tako i zbog toga što je veoma brza i jeftina. Međutim, ova tehnika ima i neke mane, a to je činjenica da ostali radionuklidi koji bi mogli biti prisutni u uzorku, a koji mogu izazvati Čerenkovljevo zračenje, ne mogu se razlikovati od radijuma, pa bi se u tom slučaju dobio kumulativan spektar Čerenkovljevog zračenja koji potiče od svih njih i radijuma zajendo.

Kako je zakonska granica prisutnosti ^{226}Ra u vodi manja od 0.5 Bq l^{-1} , znači da tehnika koja ne uključuje miješanje uzorka vode sa scintilacionim koktelom, jeste validna za mjerjenje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u vodi.

Literatura

1. L'Annunziata, *Handbook of Radioactivity Analasys*, 2012
2. Stojković I., *Optimizacija Tečnog Scintilacionog Spektrometra za Ispitivanje Alfa i Beta Emitera u Vodi (doktorska disertacija)*, 2015
3. Todorović N., Nikolov J., Stojković I., *Nuklearne Analitičke Tehnike Tecne Scintilacione Sektrosskopije*, 2018
4. Todorović N., Nikolov J., Stojković I., Bijelović S., Lučić S., *Radionuklidi u Pijaćim Vodama Vojvodine i Zdravstveni Rizik*, 2020
5. <https://www.rsc.org/periodic-table/element/88/radium>
6. International Atomic Energy Agency (IAEA), *A Procedure for the Rapid Determination of ^{226}Ra and ^{228}Ra in Drinking Water by Liquid Scintillation Counting*, 2014
7. Garabandić M., *Optimizacija Tečnog Scintilacionog Spektrometra za ispitivanje ^{210}Pb u Vodi Detekcijom Čerenkovljevog Zračenja (Diplomski rad)*, 2019
8. Krmar M., *Uvod u Nuklearnu Fiziku*, 2013
9. Krmar M., *Nuklearna Fizika (skripta)*, 2017

UNIVERZITET U NOVOM SADU

PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Redni broj:

RBR

Identifikacioni broj:

IBR

Tip dokumentacije: Monografska dokumentacija

TD

Tip zapisa: Tekstualni štampani materijal

TZ

Vrsta rada: Diplomski rad

VR

Autor: Ljubica Đozlja

AU

Mentor: Prof Nataša Todorović

MN

Naslov rada: Određivanje ^{226}Ra u vodi detekcijom Čerenkovljevog zračenja

NR

Jezik publikacije: srpski (latinica)

JP

Jezik izvoda: srpski/engleski

JI

Zemlja publikovanja: Republika Srbija

ZP

Uže geografsko područje: Vojvodina

UGP

Godina: 2021

GO

<i>Izdavač:</i>	Autorski reprint
IZ	
<i>Mesto i adresa:</i>	Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad
MA	
<i>Fizički opis rada:</i>	Broj poglavlja: 8 Broj strana: 48 Broj tabela: 6 Broj slika: 21
FO	
<i>Naučna oblast:</i>	Fizika
NO	
<i>Naučna disciplina:</i>	Nuklearna fizika
ND	
<i>Predmetna odrednica/ ključne reči:</i>	Radioaktivnost, tečni scintilacioni detektor, Quantulus 1220, radijum u dovi, kalibracija, Černekovljevo zračenje
PO	
UDK	
<i>Čuva se:</i>	Biblioteka departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu
ČU	
<i>Važna napomena:</i>	nema
VN	
<i>Izvod:</i>	
IZ	
<i>Datum prihvatanja teme od NN veća:</i>	
DP	
<i>Datum odrbrane:</i>	14.07.2021.
DO	
<i>Članovi komisije:</i>	
KO	
<i>Predsednik: prof dr Olivera Klisuric</i>	
<i>član: doc Nikola Jovančević</i>	
<i>član: prof dr Jovana Nikolov</i>	

UNIVERSITY OF NOVI SAD
FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS

KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number:

ANO

Identification number:

INO

Document type: Monograph publication

DT

Type of record: Textual printed material

TR

Content code: Final paper

CC

Author: Ljubica Đozlija

AU

Mentor/comentor: Prof Nataša Todorović

MN

Title: Determination of ^{226}Ra in water by Cherenkov radiation

TI

Language of text: Serbian (Latin)

LT

Language of abstract: English

LA

Country of publication: Republic of Serbia

CP

Locality of publication: Vojvodina

LP

Publication year: 2021

PY

<i>Publisher:</i>	Author's reprint
PU	
<i>Publication place:</i>	Faculty of Science and Mathematics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad
PP	
<i>Physical description:</i>	
PD	
<i>Scientific field:</i>	Physics
SF	
<i>Scientific discipline:</i>	Nuclear physics
SD	
<i>Subject/ Key words:</i>	Radioactivity, liquid scintillation spectrometry, Quantulus 1220, ^{226}Ra in water, calibration, Cherenkov radiation
SKW	
UC	
<i>Holding data:</i>	Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4
HD	
<i>Note:</i>	none
N	
<i>Abstract:</i>	
AB	

Accepted by the Scientific Board:

ASB

Defended on: 14.07.2021.

DE

Thesis defend board:

DB

President:

Member:

Member: