



UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI
FAKULTET
DEPARTMAN ZA FIZIKU



Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje ^{210}Pb u vodi detekcijom Čerenkovljevog zračenja

- diplomski rad -

Mentor:

Prof. dr Nataša Todorović
Doc. dr Ivana Stojković

Kandidat:

Miloš Garabandić

Novi Sad, oktobar 2019.

Ovim putem želeo bih da se zahvalim svim ljudima koji su bili uz mene tokom školovanja profesorima, kolegama a najviše svojoj porodici.

*Nema potrebe nabrajati sve te divne ljude, prepoznaće se sami,
još jednom veliko HVALA!*

Sadržaj

1. Prirodna radioaktivnost.....	1
Zakon radioaktivnog raspada	2
2. Radioaktivna ravnoteža	4
3. Jonizujuće zračenje.....	6
Beta raspad.....	7
Interakcije beta čestice sa materijom	8
Černekovljevo zračenje	10
4. Oovo-210	12
Određivanje sadržaja olova-210 u vodi	15
Izloženost stanovništva ^{210}Pb i procena rizika. Zakonska regulativa	19
5. Scintilacioni detektori.....	23
Tečni organski scintilatori.....	25
Metodi tečne scintilacione spektroskopije	26
Quantulus 1220	27
Princip rada.....	28
6. Eksperiment i obrada rezultata	32
Konfiguracija protokola merenja.....	33
Analiza generisanog spektra $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ preko Čerenkovljevog zračenja	34
Podešavanje optimalnog spektralnog prozora.....	34
Kalibracija detektora	35
Prag detekcije	37
Analiza kalibracionih parametara za $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ detekciju	38
Zaključak.....	38
Literatura.....	41

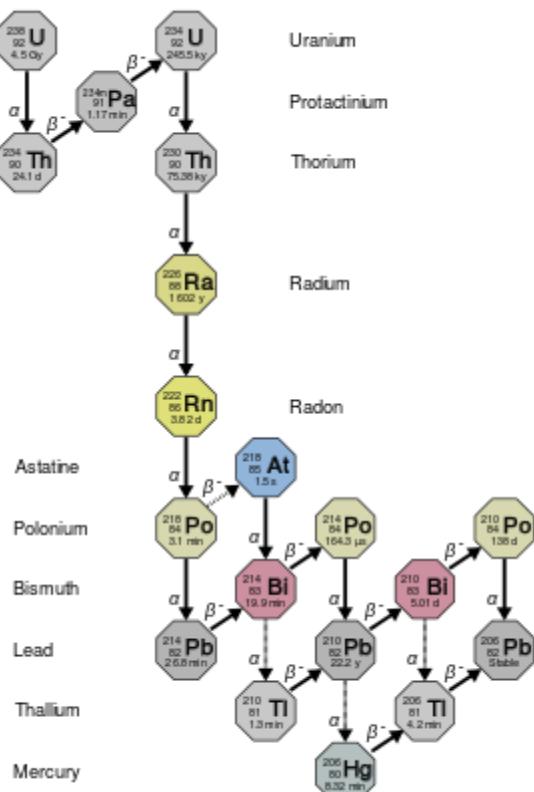
1. Prirodna radioaktivnost

Prva saznanja o atomskom jezgru formirana su 1896. godine, kada je A. Bekerel otkrio da uran i njegova jedinjena spontano emituju radioaktivno zračenje. Ustanovljeno je da to zračenje ionizuje vazduh i da izaziva hemijske procese.

Analizom uranovih ruda izdvojena su još dva hemijska elementa, radijum i polonijum. Ispitivanjem osnovnih svojstava ovih radioaktivnih elemenata dokazano je da je emisija nuklearnog zračenja spontana i da se na njenu brzinu ne može uticati dodavanjem energije.

Kasnije je utvrđeno da se jezgro može bombardovati nekim česticama (protonima, neutronima, deuteronima...), pri čemu bi se stvorila nova jezgra koja su radioaktivna, ovakva vrsta radioaktivnosti nazvana je veštačka radioaktivnost.

Prirodna radioaktivnost izaziva emisiju ionizujućeg zračenja iz prirodnih radioaktivnih izvora čijem dejstvu su izložena sva živa bića na planeti. Ova vrsta radioaktivnosti primećena je kod nestabilnijih jezgara, kod onih na kraju tablice Periodnog sistema elemenata, prema tome prirodna radioaktivnost je pojava spontanog pretvaranja nestabilnih jezgara jednog hemijskog elementa u jezgra drugih elemenata uz emisiju alfa i beta čestica i gama zračenja.



Slika 1. Prikaz ^{238}U niza

Svi elementi čiji je atomski broj veći od 83 su radioaktivni. Ti elementi se grupišu u lance, tzv. radioaktivne nizove, u kojima dolazi do sukcesivnih raspada. Rodonačelnik niza je izotop koji стоји na vrhu niza i čijim raspadom nastaju svi članovi niza koji se nazivaju potomci. Na slici 1 prikazani su članovi ^{238}U niza. U prirodi postoje četiri radioaktivna niza (Tabela 1), pri čemu su se članovi četvrtog, ^{237}Np niza, odavno raspali zbog relativno kratkih perioda poluraspada:

1. *Uranijumov (^{238}U) niz*
2. *Torijumov (^{232}Th) niz*
3. *Aktinijumov (^{235}U) niz*
4. *Neptunijumov (^{237}Np) niz*

Tabela 1. Pregled radioaktivnih nizova u prirodi

Izotop	^{238}U (niz uranijuma)	^{235}U (niz aktinourana)	^{232}Th (niz torijuma)	^{237}Np (niz neptunijuma)
Prirodna ob.(at. %)	99274	7202	100	-
$T_{1/2}$ (god)	4.468×10^9	0.704×10^9	1.405×10^{10}	2.14×10^6
Krajnji proizvod	^{206}Pb	^{207}Pb	^{208}Pb	^{209}Bi
Tip niza	$4n+2$	$4n+3$	$4n$	$4n+1$

Zakon radioaktivnog raspada

Atomska jezgra se sa aspekta radioaktivnog raspada mogu podeliti na stabilna i nestabilna (Krmar, 2013). Stabilna će živeti sve dok nešto ne utiče na njih, odnosno ne deluje dovoljnom energijom da ih razdvoji ili spoji u neko veće jezgro, a ako se ništa od toga ne desi, trajaće večno. Nestabilna jezgra će postojati samo neko vreme, a onda se spontano raspasti prema zakonu radioaktivnog raspada. Vreme poluraspada ($T_{1/2}$) je vreme za koje početni broj radioaktivnih jezgara N_0 opadne na polovinu,

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.1)$$

pri čemu je λ – konstanta radioaktivnog raspada. Zakon radioaktivnog raspada može se izvesti na osnovu izraza:

$$dN = -\lambda N dt \quad (1.2)$$

gde je dN – promena broja jezgara,

N – broj radioaktivnih jezgara,

dt – vremenski interval.

Integracijom jednačine (1.2) dobija se eksponencijalna zavisnost broja preostalih radioaktivnih jezgara N od vremena t :

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.3)$$

gde je N_0 – početni broj jezgara.

Aktivnost je broj raspada jezgara u jedinici vremena, i predstavljena je promenom broja jezgara dN tokom vremena dt , izrazom:

$$A = \frac{dN}{dt} = \lambda N \quad (1.4)$$

gde je N -broj preostalih radioaktivnih jezgara. Jedinica je bekerel. Radioaktivni izvor ima aktivnost od jednog bekerela ako se u njemu u toku jedne sekunde desi jedan radioaktivni rastap, $Bq=s^{-1}$.

Ako i levu i desnu stranu zakona radioaktivnog raspada (1.3) pomnožimo konstantom radioaktivnog raspada dobija se aktivnost u eksponencijalnom obliku i data je izrazom:

$$\lambda N = \lambda N_0 2^{\frac{-t}{T_{1/2}}} \quad (1.5)$$

$$A = A_0 2^{\frac{-t}{T_{1/2}}} = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1.6)$$

gde su:

A_0 – početna aktivnost datog radioaktivnog izvora,

A – preostala aktivnost tog izvora u trenutku t .

Specifična aktivnost predstavlja aktivnost po jedinici mase, data je izrazom:

$$A_{sp} = \frac{A}{m} \frac{[Bq]}{[kg]} \quad (1.7)$$

Ukoliko se nekom radioaktivnom uzorku zna masa m , broj jezgara N , i molarna masa M , tada se trenutna aktivnost određuje pomoću formule:

$$A = \lambda N = \frac{m N_a}{M} \quad (1.8)$$

gde je N_a – Avogadrov broj.

2. Radioaktivna ravnoteža

Sekularna ravnoteža

Kada se potomci brže raspadaju od roditeljskog niza, posle određenog vremena koje je duže od nekoliko perioda poluraspada potomka dolazi do uspostavljanja režima koji se zove sekularna ravnoteža. Kada kažemo da je došlo do ravnoteže mislimo na to da aktivnost svih članova u nizu postaje jednaka aktivnosti rodonačelnika niza.

Do ravnoteže dolazi kada se brzina nastajanja izjednačava sa brzinom nestajanja za sve članove u samom nizu, osim prvog i poslednjeg, pa se na taj način broj atoma za svaki izotop u nizu održava stalnim. Kada je radioaktivni niz u ravnoteži, same aktivnosti svih radionuklida u nizu su iste, te se koncentracija predaka određuje merenjem intenziteta gama zračenja bilo kog potomka. Određivanje perioda poluraspada, broja atoma, konstante radioaktivnog raspada bilo kojeg člana se rešava razmatranjem čitavog radioaktivnog procesa koji se opisuje sistemom diferencijalnih jednačina, te se za radioaktivni niz od n članova može pisati:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \frac{dN_3}{dt} &= \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \\ \vdots \\ \frac{dN_n}{dt} &= \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n \end{aligned} \quad (2.1)$$

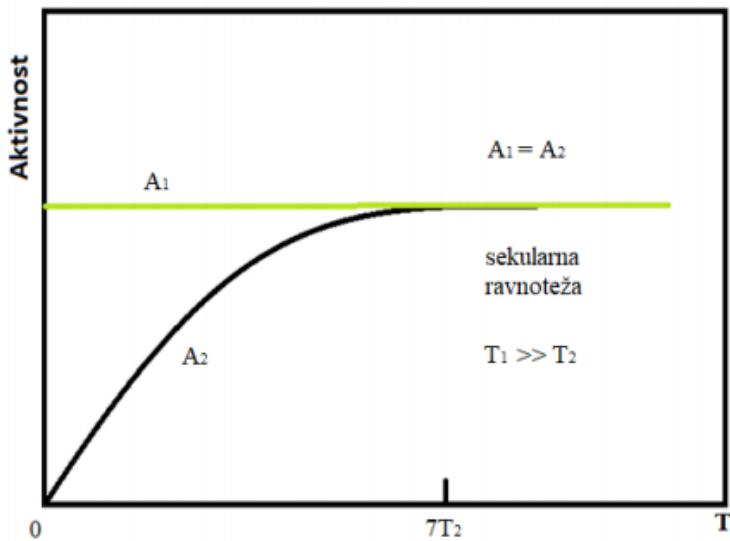
Primenom sledećeg uslova na članove niza:

$$\frac{dN}{dt} = 0 \quad (2.2)$$

pokazujemo da se u nekom trenutku vremena raspadne onoliko atoma koliko se i stvori. Matematički gledano ovi uslovi nikad nisu ispunjeni ali stanja bliska radioaktivnim ravnotežama su moguća, kada period poluraspada pretka $T_{1/2}$ teži beskonačnosti, ili je znatno veći u odnosu na period poluraspada potomka (Marinkov, 2010). U sekularnoj ravnoteži važi uslov:

$$\lambda_1 \ll \lambda_2 \quad \text{ili} \quad T_{1/2}^{(1)} \gg T_{1/2}^{(2)} \quad (2.3)$$

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_n N_n \quad (2.4)$$



Slika 2. Grafički prikaz sekularne (trajne) radioaktivne ravnoteže koja nastupa nakon 7 perioda poluraspada direktnog potomka uz uslov $T_{1/2}^{(1)} \gg T_{1/2}^{(2)}$

Na slici 2 prikazana je vremenska zavisnost aktivnosti u slučaju raspada dva radionuklida čiji se periodi poluraspada odnose kao $T_{1/2}^{(1)} \gg T_{1/2}^{(2)}$. Aktivnost potomka raste sa vremenom, tako da se aktivnosti pretka i potomka izjednačavaju nakon vremena $t > 7 T_{1/2}^{(2)}$.

Aktivnost potomka iskazuje se funkcijom:

$$A = \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.5)$$

Apsolutna aktivnost je jednaka sumi aktivnosti pretka i potomka:

$$A_{tot} = \lambda_1 N_{01} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (2 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.6)$$

Tranzitna ravnoteža

Ovaj tip ravnoteže nastaje kada je period poluraspada pretka veći od perioda poluraspada potomka, tada važi uslov:

$$T_{1/2}^{(1)} > T_{1/2}^{(2)} \quad (2.7)$$

$$e^{-\lambda_2 t} < e^{-\lambda_1 t}$$

Iz navedenih uslova broj atoma potomka će biti:

$$N_2 \cong \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (2.8)$$

Prema datoju jednačini sledi da kada se radioaktivna ravnoteža uspostavi, apsolutna aktivnost opada sa periodom poluraspada pretka:

$$N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (2.9)$$

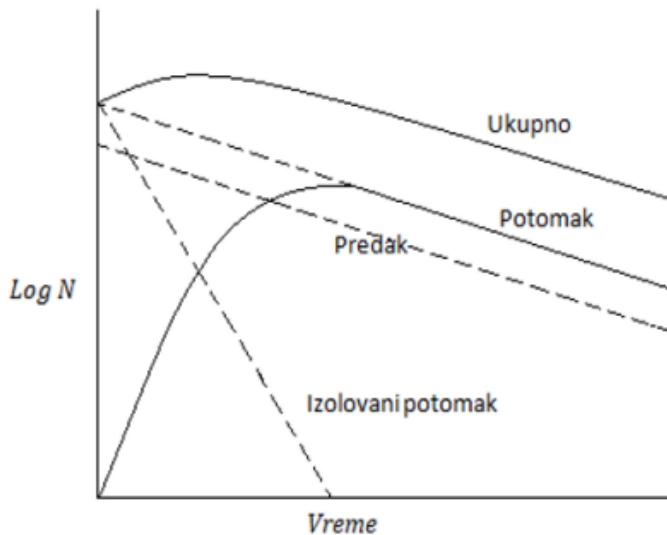
Odnos broja pretka i potomka dat je relacijom:

$$\frac{N_2}{N_1} \cong \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (2.10)$$

Odnos aktivnosti pri datoј radioaktivnoј ravnoteži dat je као:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (2.11)$$

Iz relacije видимо да је активност потомка већа од активности pretka за фактор $\frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}$. Зависност активности pretka, потомка, као и ukupne активности у tranzitnoj ravnoteži prikazana je na slici 3.



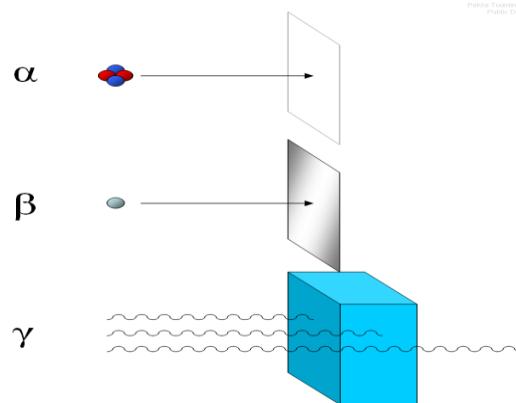
Slika 3. Grafički prikaz tranzitne (prelazne) ravnoteže

3. Jonizujuće zračenje

Sva nestabilna jezgra spontano se raspadaju u procesu radioaktivnosti prilikom čega dolazi do emisije radioaktivnog zračenja alfa, beta i gama zračenja. Na taj način prelaze u niža i stabilnija stanja. Radioaktivno zračenje spada u jonizujuće zračenje jer ionizuje atome materije sa kojom dolazi u kontakt tj. izbacuje elektrone iz njihovih atomskih omotača. Prema načinu interakcije sa materijom deli se na na:

1. Čestično – jonizacija, ekscitacija i radijacioni efekti (kod lakih nanelektrisanih čestica)
2. Fotonsko – fotoefekat, Komptonov efekat i efekat stvaranja parova.

U ovom radu prvenstveno ćemo se bazirati na beta zračenju.

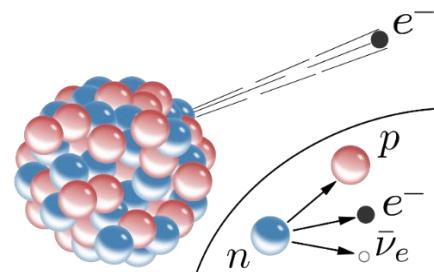
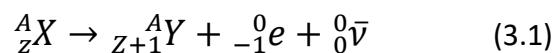


Slika 4. Prikaz prodornosti jonizujućeg zračenja: alfa čestice zaustavlja već list papira, beta čestice se zaustavljaju aluminijuskom folijom, dok se gama zraci mogu zasutaviti blokovima od betona ili olova (potrebna debljina materijala zavisi od energije gama zračenja)

Beta raspad

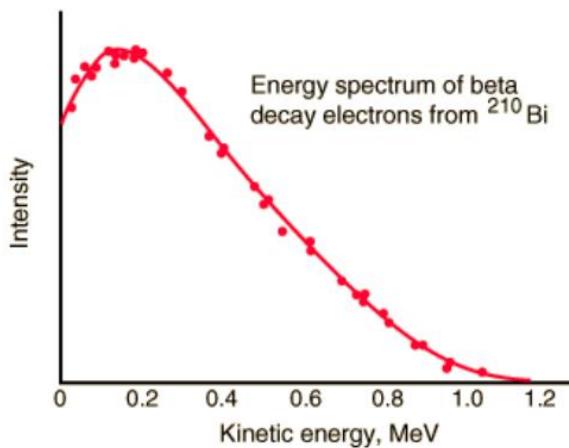
U beta raspade spadaju: beta minus raspad (elektronski beta raspad), beta plus ili pozitronski beta raspad i zahvat elektrona. Pri elektronskom beta raspadu oslobađaju se elektroni koji ionizuju materiju kroz koju prolaze.

Elektronskom beta raspadu podložna su nestabilna jezgra koja imaju višak neutrona. Jedan neutron iz jezgra transformiše se u proton koji ostaje u jezgru, a iz jezgra izlaze electron i antineutrino. Novonastalo jezgro pomera se za jedno mesto udesno u periodnom sistemu elemenata. Proces elektronskog beta raspada prikazan je na slici 5 i dat je izrazom:



Slika 5. Prilikom beta minus raspada emituje se elektron i čestica antineutrino.

Emitovane beta čestice iz jezgra imaju kontinualan spektar energija. Karakterističan energetski spektar beta čestica prikazan je na slici 5, i to za slučaj raspada ${}^{210}\text{Bi}$, pri čemu se dobija jezgro ${}^{210}\text{Po}$.

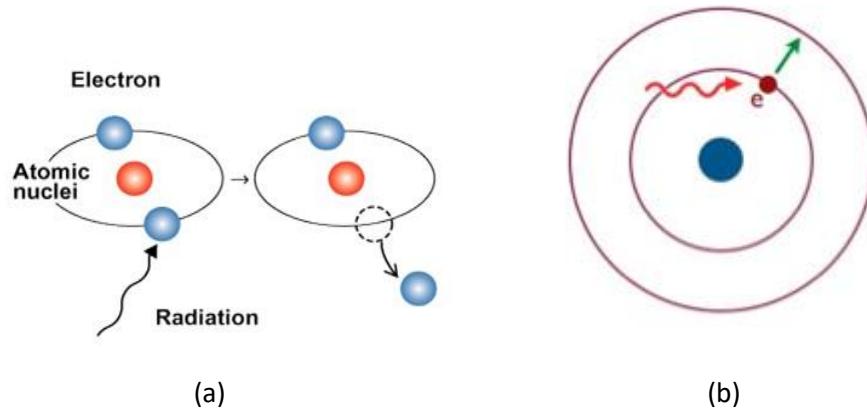


Slika 6. Energetski spektar beta čestice

Interakcije beta čestice sa materijom

Sama interakcija jednog elektrona sa orbitalnim elektronom preko Kulonove interakcije rezultuje se na dva načina prikazana na slici 7,

1. **Jonizacijom** - atom gubi valentni elektron iz svoje poslednje elektronske ljudske.
2. **Eksitacijom** - kretanje elektrona do višeg energetskog nivoa usled apsorbovanja fotona.



Slika 7. (a) Prikaz jonizacije, (b) Prikaz eksitacije.

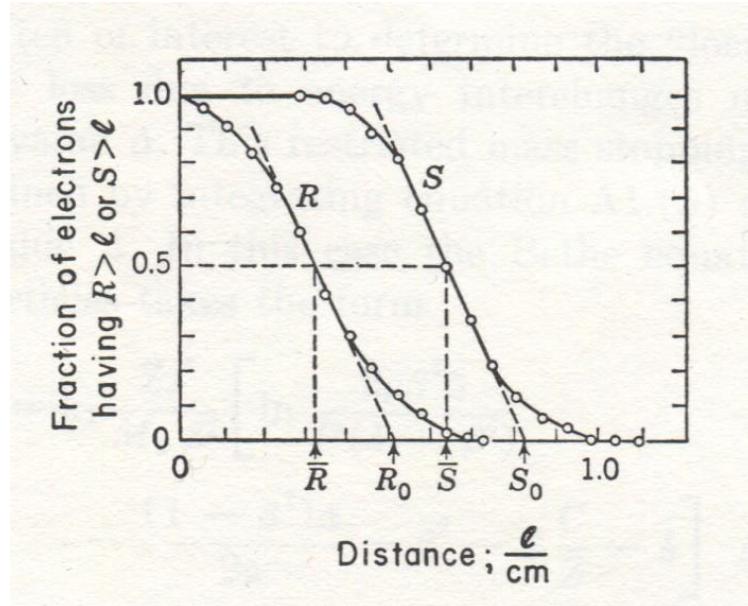
Kada nanelektrisana čestica prolazi kroz neki medijum, ona može da interaguje sa elektronima iz elektronskog omotača atoma i sa jezgrom u formi elastičnog i neelastičnog sudara. Neelastičan sudar sa elektronima iz elektronskog omotača atoma ogleda se u jonizaciji i ekscitaciji atoma. U procesu jonizacije elektron je izbačen iz elektronskog omotača atoma. Ovaj proces se naziva primarna jonizacija. Ako nastali elektroni imaju dovoljno energije za dalju jonizaciju, tada se novi proces naziva sekundarna jonizacija.

Neelastični sudari izmedju nanelektrisane čestice i jezgra atoma dešavaju se u vidu nuklearnih ekscitacija i transformacija jezgra. U ovim procesima nanelektrisane čestice mogu biti apsorbovane iz upadnog snopa. Ako proces apsorpcije nije zanemarljiv u odnosu na ionizaciju, u tom slučaju nije moguće precizno definisati domet čestice.

Još se jedan oblik neelastičnog sudara javlja između jezgra i lake nanelektrisane čestice, elektrona. U ovom procesu jezgro menja brzinu elektrona, ako elektron proleti na dovoljno bliskom rastojanju od njega. Posledica ovakve interakcije je emisija elektromagnetskog zračenja, koje je poznato pod nazivom zakočno zračenje.

Drugi oblik radijacionih gubitaka nanelektrisane čestice se ogleda u depolarizaciji longitudinalno polarizovanog medijuma nastalog prolaskom brze nanelektrisane čestice. Ovaj proces je moguć samo ako je brzina nanelektrisane čestice u datom medijumu veća od fazne brzine svetlosti u istoj sredini. Ovo zračenje je dobilo naziv po pronalazaču Čerenkovu-Čerenkovljevo zračenje (*Marinkov, 2010*).

Prilikom prolaska elektrona kroz neki materijal, zbog skretanja koje je često, njihov broj se znatno smanjuje ili osipa. Minimalna debljina sloja nekog materijala koja u potpunosti zaustavlja ovo zračenje je različita od dužine njegove putanje. Domet nanelektrisane čestice je rastojanje koje ona pređe pre nego što dospe do stanja mirovanja. Recipročna vrednost zaustavne moći je pređeno rastojanje za jedinični gubitak energije. Dakle, dolazimo do zaključka da se sama kinetička energija čestice smanjuje po neprekidnoj funkciji sve do njenog potpunog usporavanja. Srednji put elektrona u nekom materijalu je duplo duži od dometa. Maksimalni domet elektrona se može odrediti preko preseka atenuacione krive i apcise, slika 8. Takođe se definiše i ekstrapolirani domet, kao presek pravca linearног dela atenuacione krive sa apscisom. Sa grafikom na slici 6 vidimo da je kriva delimično eksponencijalna, tada se atenuacija prikazuje po eksponencijalnom zakonu, preko kojeg se može proceniti način na koji slabi snop beta zračenja koji prolazi kroz neki atenuator.



Slika 8. Zavisnost broja elektrona od debljine sloja materijala kroz koji prolazi snop beta čestica Čerenkovljevo zračenje

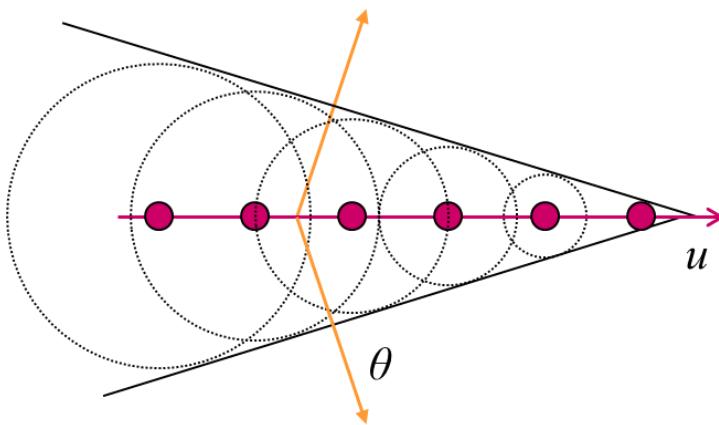
Čerenkov je ispitivao luminiscentna svojstva rastvora uranovih soli, izlažući ih dejstvu gama zraka radijuma, pri čemu je otkrio novi vid zračenja koje se nije moglo objasniti običnim mehanizmom fluorescencije.

Teorijsko tumačenje ovog, novog zračenja, zračenja Čerenkova, dali su I.E.Tam i I.M. Frank na osnovu klasične elektrodinamike. Iz teorije sledi da zračenje Čerenkova, može proizvesti svaka nanelektrisana čestica u nekoj sredini pod uslovom da njena brzina v veća od fazne brzine svetlosti c u istoj sredini. Izraz se može napisati u obliku:

$$v > c/n \quad c = 3 \times 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}}, \quad (3.2)$$

gde su n - indeks prelamanja svetlosti, i c - brzina svetlosti. Uslov će biti ispunjen kada je indeks prelamanja svetlosti n veći od jedinice.

Čerenkovljevo zračenje predstavlja depolarizaciju polarizovanih dipola, koja nanelektrisana čestica polarizuje krećući se kroz medijum brzinom većom od fazne brzine svetlosti. Karakteristično je da pravac prostiranja zračenja Čerenkova zračenja zavisi od upadne čestice. Posle emisije, elektromagnetični talasi Čerenkova obrazuju front koji ima konusnu formu kao što je prikazano na slici 8.



Slika 9. Elektromagnetni talasi Čerenkova obrazuju front koji ima konusnu formu

Čestica koja je nanelektrisana kreće se po osi konusa. Sam pravac emitovanog elektromagnetenog zračenja zaklapa ugao θ sa pravcem kretanja čestica, gde kosinus ovog ugla ima vrednost:

$$\cos\theta = \frac{1}{n\beta}, \quad (3.3)$$

gde je relativna fazna brzina čestice $\beta = \frac{v}{c}$. Na osnovu pravca prostiranja zračenja Čerenkova moguće je odrediti energiju upadne čestice, jer β može da varira samo u sledećim navedenim granicama

$$\frac{1}{n} < \beta < 1. \quad (3.4)$$

Kada je $\beta = \frac{1}{n}$, svetlost će se prostirati pod uglom od 0° , a kada je $\beta = 1$, svetlost će se prostirati pod maksimalnim uglom, $\arccos \frac{1}{n}$.

Frank i Tam su pokazali da su gubici energije nanelektrisane čestice na zračenje Čerenkova dati sledećim izrazom:

$$-(\frac{dE}{dx})_{\text{Čer}} = \frac{4\pi^2 Z^2 e^2}{c^2} \int_0^{v_{\max}} (1 - \frac{1}{\beta^2 n^2}) v \, d v \quad (3.5)$$

gde je Z - nanelektrisanje upadne čestice,

v - frekvencija emitovane svetlosti.

Gornji integral je dat po svim frekvencijama elektromagnetenog zračenja, emitovanog pri uslovu da je $\beta n > 1$.

Svetlost Čerenkova po talasnim dužinama nalazi se na granici plavog dela vidljivog spektra.

Gubici energije nanelektrisane čestice na zračenje Čerenkova obično su mali u poređenju sa gubicima energije na ionizaciju i ekcitaciju sredine, ali mogu biti značajni za relativističke čestice.

Srednji broj emitovanih kvanata N u nekoj uskoj spektralnoj oblasti, koja je određena talasnim dužinama od λ_1 do λ_2 , kada nanelektrisana čestica pređe put dužine l iznosi:

$$N = \frac{4\pi^2 Z^2 e^2}{h c} \cdot l \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2}\right) \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2}\right) \quad (3.6)$$

Ovaj obrazac može se primeniti na slučaj fotona zračenja Čerenkova koje će emitovati voda kada kroz nju prođe relativistički elektron na dužini od 1 cm, račun pokazuje da broj fotona iznosi 10 kada je interval talasnih dužina uzet od 400 do 600 nm.

Relativna fazna brzina elektrona β zavisi od njegove kinetičke energije E preko izraza:

$$\beta = \sqrt{1 - \left(\frac{1}{\frac{E}{m_0 c^2} + 1}\right)^2} \quad (3.7)$$

gde je: $m_0 c^2 = 511 \text{ keV}$ – energija mirovanja elektrona.

Ako uzmemo da je granična vrednost β za produkciјu Čerenkovog zračenja $\beta n = 1$, dobija se vrednost energetskog praga elektrona:

$$E_{\text{prag}} = m_0 c^2 \left[\left(1 - \frac{1}{n^2}\right)^{-\frac{1}{2}} - 1 \right] \quad , \quad (3.8)$$

dakle, minimalna energija elektrona za produkciјu Čerenkovljevog zračenja očigledno zavisi od indeksa refrakcije date sredine. Treba dodati da energijski prag elektrona za generisanje Čerenkovljevog zračenja u vodi ($n=1.33$) iznosi 263 keV.

4. Olovo-210

Oovo je jedan od relativno retkih elemenata u prirodi, a njegov sadržaj u zemljinoj kori je $1.6 \cdot 10^{-3\%}$ [Gibson, 1961]. Prirodno oovo je mešavina četiri stabilna izotopa koji su krajnji proizvodi tri prirodna radioaktivna niza: ^{204}Pb (1,4%), ^{206}Pb (24,1%), ^{207}Pb (22,1%) i ^{208}Pb (52,4%) [Pfenning et al., 1998].

Pored njih, postoji 27 radioaktivnih izotopa olova sa masenim brojevima od 183–214, dok je ^{210}Pb najprijsutniji u prirodi zbog njegovog relativno dugog poluživota [Pfenning et al., 1998]. Radioizotop prirodnog porekla ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22.23$ (12) god) nastaje iz radioaktivnog niza ^{238}U i doprinosi ukupnoj izloženosti ljudi radijaciji. ^{210}Pb nastaje raspadanjem atmosferskog gasa ^{222}Rn („neodržavani“ ^{210}Pb); i kontinuiranom proizvodnjom ^{222}Rn od strane ^{226}Ra prisutnog u prirodi, u Zemljinoj kori („podržani“ ^{210}Pb) [Cook et al., 2018]. Njegovo poreklo je, dakle, dominantno povezano sa emanacijom gasa ^{222}Rn iz zemljišta i sedimenata. Njegove niske aktivnosti mogu se povećati u uzorcima životne sredine raznim tehnološkim procesima tokom industrijskih

operacija, iskopavanjem u rudnicima urana, u otpadu tokom proizvodnje fosforne kiseline, eksploataciji nafte i gasa i proizvodnji energije iz uglja, kao i u ostacima rudarenja i topljenja bakarnih ruda koje sadrže uranijum [Cook et al., 2018]. Ispuštanje ^{210}Pb u životnu sredinu, posebno na lokalitetima u kojima je prirodna radioaktivnost pospešena tehnološkim procesima, redovno se prati u mnogim zemljama u raznim matricama, zemljištu, vodi i vazduhu.

Olovo-210 može se direktno detektovati i kvantifikovati gama spektrometrijom, ili indirektno, detekcijom svojih potomaka, ^{210}Bi i ^{210}Po . Njegov potomak ^{210}Po se meri alfa spektrometrijom, dok se ^{210}Bi može detektovati na proporcionalnom brojaču ili tečnom scintilacionom brojaču (bilo pomoću standardne Liquid Scintillation Counting LSC tehnike ili preko Čerenkovljevog brojača). Uslovi za indirektna merenja ^{210}Pb uključuju prekoncentraciju uzorka, hemijsko odvajanje u uzorku i omogućavanje adekvatnog perioda rasta (postizanje radioaktivne ravnoteže) radioizotopa potomka.

Prisustvo ^{210}Pb u vodi

Iz ^{226}Ra nastaje ^{222}Rn , plemeniti gas koji se kroz pukotine u zemljištu difunduje u vodonosne slojeve, gde se mogu rastopiti njegovi dugoživeći produksi ^{210}Pb , ^{210}Bi i ^{210}Po [Benedik i Vreček, 2001]. Pored toga, atomi ^{210}Pb migriraju i iz tla u atmosferu (posle raspada atmosferskog ^{222}Rn gasa); pričvršćeni su na čestične materijale u vazduhu nakon čega ih taloženje ili suvo taloženje uklanja iz atmosfere. Depozicija radioaktivnog ^{210}Pb završava na kopnu ili vodenoj površini, bilo adsorpcijom na sedimentima u ribnjacima i morima ili taloženjem na sedimentu na jezerskom dnu ili morskom dnu praćeno naknadnim akumulacijama. Aktivnost ^{210}Pb u okeanima smanjuje se sa njegovom dubinom, što implicira da se atomi ^{210}Pb brzo uklanjaju iz vodenog stuba adsorpcijom na česticama ili taloženjem sa hidroksidima gvožđa i manganovim oksidima. Vreme boravka ^{210}Pb u okeanskoj vodi procenjuje se od na manje od mesec dana u blizini kopna, do na preko 50 godina u okeanu, dok je u jezerima reda veličine nekoliko meseci [Johansson, 2008].

Prijavljene koncentracije ^{210}Pb u rastvorenoj frakciji u uzorcima morske vode kreću se od 1 do 3 mBq/l [Nozaki et al., 1976]; od oko 1,7 mBq/l u gornjim vodenim slojevima do 4,7 mBq/l na dubini od 2000 m, sa procenjenim vremenom biološkog uklanjanja od 2 godine za ^{210}Pb [Rama et al., 1961].

U literaturi su zabeležene koncentracije aktivnosti ^{210}Pb i za flaširane vode za piće, koje su u opsegu (0.6–13.2) mBq/l [Benedik i Jeran, 2012], (0.7–7.6) mBq/l [Rožmarić i dr., 2012] ili (3–17) mBq/l [Vallner et al., 2008]. U pitkoj vodi iz privatnih bunara koncentracija aktivnosti ^{210}Po je između 7-48 mBq/l, a za ^{210}Pb oko 11-40 mBq/l [Persson i Holm, 2011].

Glavni izvori tehnički poboljšane prirodne radioaktivnosti su rudarske aktivnosti (uranijum, ugalj i mineralni pesak), topljenje bakarnih i polimetalnih ruda, izgaranje uglja i fosilnih goriva i proizvodnje drugih vidova energije, poput geotermalne energije, kao i upotreba fosfatnih stena [Johansson, 2008]. Iskopavanje zemljišta kontaminira životnu sredinu rastvorenim prirodnim radionuklidima iz serije raspada ^{238}U i ^{232}Th koji se na površinu dovode drenažom rudnih voda i ispuštaju u obližnje vodovodne sisteme, ili se minski otpad odlaže u neposrednoj blizini, koji su zatim izloženi raznim vremenskim uslovima i inspiranju radionuklida vodom [Johansson, 2008]. Ovi

procesi mogu uzrokovati povećanu izloženost radijaciji ljudi koji žive u blizini tih područja ili koriste zagađenu vodu za piće. Tabela 2 navodi godišnje ispuštanje ^{210}Pb u vazduh i vodu iz postrojenja za preradu minerala. Otpuštanje u atmosferu olova ^{210}Pb značajnim termičkim procesima (elementarni fosfor i proizvodnja gvožđa i čelika) izaziva raspršenje ^{210}Pb na velikim udaljenostima, dok prerada fosfata uglavnom oslobađa znatne količine ^{210}Pb u vodenim sistemima.

Tabela 2. Ispuštanje ^{210}Pb u vazduh i vodu iz teške industrije [UNSCEAR, 2000]

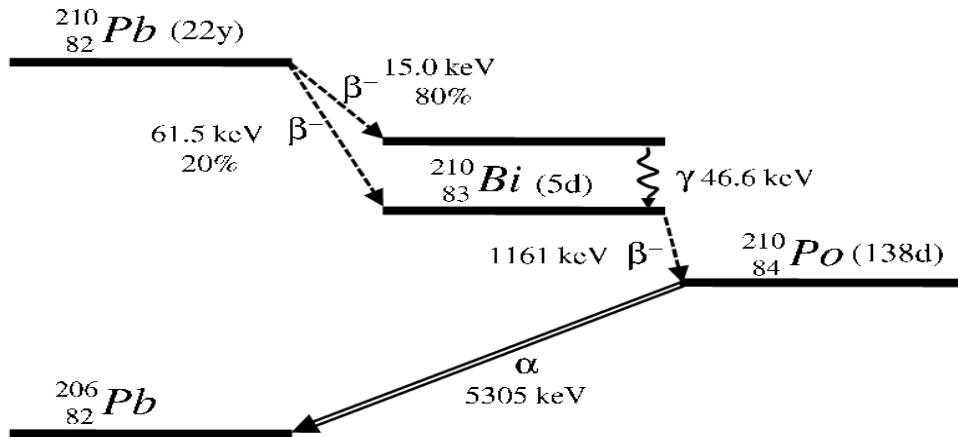
Industrija	Ispuštanje u vazduh [GBq god $^{-1}$]	Ispuštanje u vodu [GBq god $^{-1}$]
Elementarni fosfor	66	24
Fosforna kiselina	-	654
Djubriva	-	0.054
Proizvodnja metala i gvožđa	55	0.51
Termo elektrane na ugalj (600 MWe)	0.4	-
Industrija cemena	0.2	-
Industrija peska i kamena	0.73	0.066
Titanijumske boje	0.001	0.003
Naftna industrija	-	174
Gasna industrija	-	32

Olovo i bizmut

Radioizotop ^{210}Pb je niskoenergetski beta emiter sa poluživotom $T_{(1/2)} = 22,23$ (12) godine. Šema njegovog raspada prikazana je na slici 10. Dve grane raspada, sa maksimalnim energijama emitovanih elektrona, $E_{\text{bmaks}} = 17,0$ (5) keV i $E_{\text{bmaks}} = 63,5$ (5) keV, imaju verovatnoće 80,2% i 19,8%, respektivno. Potomak ^{210}Pb je visokoenergetski beta emitter bizmut ^{210}Bi , $E_{\text{bmaks}} = 1162.2$ (8) keV, sa poluživotom $T_{(1/2)} = 5.012$ (5) d. U Tabeli 3 je data sličnost između olova i bizmuta.

Tabela 3. Sekularnom ravnotežom nakon 40 dana dolazi do izjednačavanja aktivnosti olova i bizmuta u uzorcima iz životne sredine.

Element	^{210}Pb	^{210}Bi
Tip raspada	1. Beta minus β^-	1. Gama γ
Energija	15 keV	46.6 keV
Verovatnoća	80%	1161 keV
Period poluraspađa	22,23 godine	5 dana



Slika 10. Šema raspada olova-210 i bizmuta-210

Određivanje sadržaja olova-210 u vodi

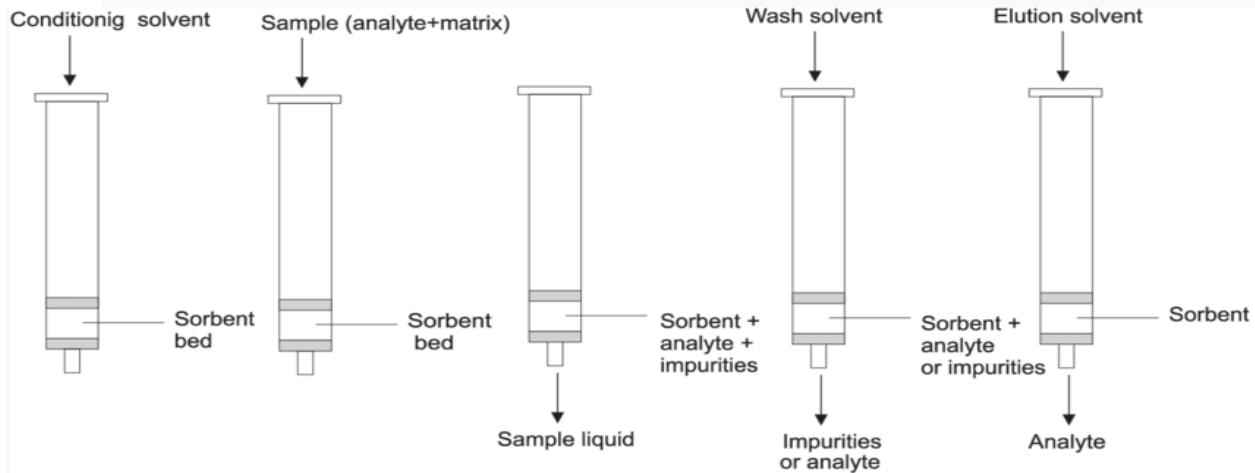
Kako prirodni nivoi ^{210}Pb mogu biti vrlo niski, a njegova šema raspadanja sadrži slabe gama linije i niske beta energije (slika 10), detekcija ^{210}Pb zahteva osetljive metode sa preciznim određivanjem. U narednom delu sledi opis radiometrijskih tehnika za detekciju ^{210}Pb .

Hemijska separacija

Merenju nivoa ^{210}Pb uvek prethodi hemijsko razdvajanje u uzorcima kako bi se dostigle niske granice detekcije. Uobičajene metode razdvajanja ^{210}Pb uključuju kolone sa anjonskom razmenom smole [Vrecek et al., 2004], metod koprecipitacije sulfata [Villa et al., 2007] ili ekstrakcionu hromatografiju upotreboom smole Sr-Spec [Vajda et al., 1997]. Taloženjem sulfata može se jednostavno i efikasno odvojiti ^{210}Pb zajedno sa Sr i Ra(Ba) izotopima od ostalih elemenata, dok se međusobna izolacija Pb, Sr i Ra (Ba) može izvoditi zbog različitih rastvorljivosti njihovih taloga sulfata / karbonata u jakom alkalnom rastvoru. Zbog toga bi se PbSO_4 mogao rastvoriti u rastvoru pri $\text{pH} > 13$, dok bi $\text{Ra(Ba)}\text{SO}_4$ i SrCO_3 ostali nerastvorljivi. Posle centrifugiranja, talog Ra(Ba) i Sr se odbacuje i Pb se ekstrahuje u rastvor supernatanta [Wang et al., 2019].

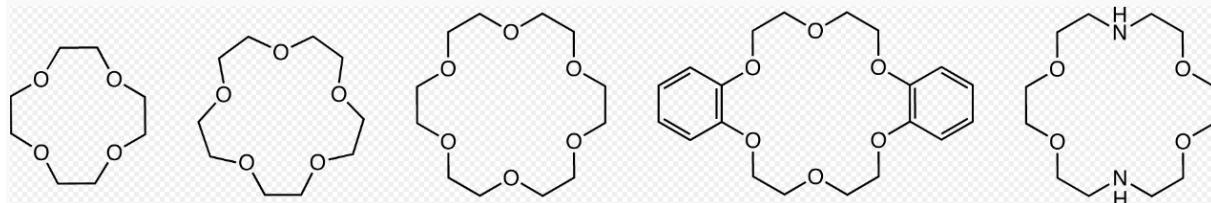
Postoje dva načina hemijske separacije olova:

1. Separacija iz čvrstog stanja



Slika 11. Procedura separacije iz čvrstog stanja

Separacija iz čvrstog stanja hromatografskom smolom (slika 11) našla je sve veću upotrebu, ona prepostavlja Sr smolu (ekstrakt stroncijuma) zasnovanu na krunskom etru, slika 12, 4,4 '(5') - bis-(t-butil-cikloheksano) -18-kruna- 6, koji pokazuje veoma visoku selektivnost za oovo sa maksimalnim koeficijentom raspodele od 10^3 . Međutim, Sr smola je modifikovana radi ekstrakcije oova, te je u literaturi poznata kao Pb smola: sadrži isti krunski eter, samo u nižoj koncentraciji i različitom rastvaraču [Horvitz i dr., 1994]

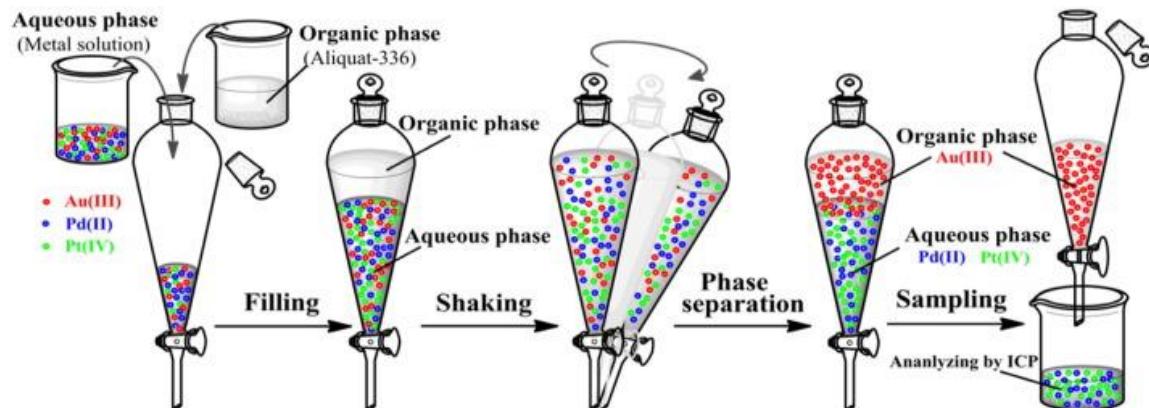


Slika 12. Krunski etri

2. Separacija iz tečnog stanja

Separacija tečnosti sa ekstraktivnim scintilatorom Polek™ je još jedna popularna tehnika, ^{210}Bi i ^{210}Po se mogu ekstrahovati u koktel iz rastvora fosforne kiseline i zatim meriti LSC tehnikom koja podrazumeva diskriminaciju alfa/beta signala [Katzlberger et al., 2001]. ^{210}Pb , koji ostaje u vodenoj fazi, može se odrediti putem dve metode:

- sprovodenjem druge separacije POLEKS-om na istoj vodenoj fazi kao i u prvom slučaju, i to nakon 2 nedelje, pošto je postignuta sekularna ravnoteža između ^{210}Bi i ^{210}Pb ,
- uzimanjem uzorka iz tečne faze i mešanjem sa tečnim scintilacionim koktelom za merenje na LSC brojaču [L'Annunziata, 2012].



Slika 12. Procedura tečne separacije

Detekcija ^{210}Pb u vodi

Olovo ^{210}Pb se može direktno meriti gama-spektrometrijom, detekcijom 46.539 keV fotona emitovanih sa intenzitetom od 4.05% (mala apsolutna verovatnoća tranzicije) pomoću poluprovodničkog detektora N-tipa HPGe sa tankim prozorom berilijuma ili ugljenika. Međutim, granice detekcije dostignute gama-spektrometrijom su reda od 100 mBq/l u 0,5 l uzorku vode [Johansson, 2008], relativno su visoke i nisu pogodne za primene u uzorcima iz životne sredine. Ostali nedostaci su velika zapremina uzorka koja je potrebna za analizu i visoka apsorpcija mekih gama zraka u uzorku i detektoru, u zavisnosti od količine uzorka, sastava, gustine i udaljenosti od detektora [Grahek et al., 2006]. Merenja moraju da budu duga, posebno pri malim aktivnostima (do nekoliko dana brojanja po uzorku) [Lariviere et al., 2005].

S druge strane, postoji izveštaj o brzom postupku gde su ^{210}Pb i ^{90}Sr odvojeni od uzoraka morske vode i vode za piće zapremine 10 l, ekstrakcijom preko Sr smole i korišćenjem anjonske razmene, sa ograničenjem detekcije 6 mBq/l za ^{210}Pb tokom vremena odbrojavanja od 100 000-200 000 s gama-spektrometrijskim merenjem [Grahek et al. 2006].

Drugo, razvijene su brojne metode za indirektna merenja ^{210}Pb preko njegovih potomaka ^{210}Po i ^{210}Bi , ako su u radioaktivnoj ravnoteži sa ^{210}Pb , te metode dovode od nekoliko puta do dva reda veličine niže granice detekcije u poređenju sa gama-spektrometrijom. Stoga je za indirektno određivanje ^{210}Pb potrebno omogućiti dovoljan period porasta aktivnosti potomaka za ravnotežu između ^{210}Pb i ciljnog potomka, pored neophodnih postupaka prekoncentracije i separacije.

Posle dva spontana taloženja ^{210}Po na srebrnoj foliji, određivanje njegove aktivnosti može se izvršiti alfa spektrometrijom. Za ^{210}Po (138,4 d) potrebno je vreme preko 4,5 meseca da dostigne 50% ravnoteže sa ^{210}Po , a 18 meseci da se dostigne 88% ravnoteže [Benedik i Vreček, 2001], što znači da je dug period čekanja između uzorkovanja i brojanja najveći nedostatak ove metode, iako se ultra-niske granice detekcije mogu postići u alfa spektroskopskim merenjima, 0,1-0,3 mBq/l [Matthevs et al., 2007]. Nakon prvog nanošenja ^{210}Po , rastvor uzorka se čuva nekoliko meseci da se omogući dovoljan porast ^{210}Po pre nego što se izvrši drugo taloženje novostvorenog ^{210}Po iz ^{210}Pb . Uzorci vode iz životne sredine obično se koncentrišu ili isparavanjem ili taloženjem sa Fe(OH)_3 ili MnO_2 , a organski materijal se razgrađuje mokrom digestijom pre rastvaranja ostatka za taloženje [L'Annunziata, 2012]. ^{208}Po ili ^{209}Po poznatih aktivnosti su dodani kao unutrašnji standardi, tj. obeleživači (*tracers*) hemijskog prinosa. Drugi nedostatak ove metode, pored složene hemije razdvajanja i dugih perioda čekanja, je činjenica da su neka ^{210}Po jedinjenja isparljiva čak i na 100 ° C i mogu se izgubiti tokom isparavanja i procedure mokre digestije [Matthevs et al., 2007].

Odvajajući ^{210}Bi od ^{210}Pb prati određivanje njegove aktivnosti putem tečnog scintilaconog brojanja (LSC) ili gasnog proporcionalnog brojanja (*Gas Flow Proportional Counting*, GFP). Efikasnost brojanja GFP-a iznosi 43% za ^{210}Pb , uz granicu detekcije $1,8 \pm 0,2 \text{ Bq/l}$ u 6 l uzorka vode [Benedik i Vreček, 2001]. U poređenju sa alfa spektrometrijskom metodom, LSC (^{210}Pb izmereno do ^{210}Bi) može značajno da smanji vreme potrebno za hemijsko razdvajanje i pruži brže analize. Granice detekcije pomoću LSC obično su nekoliko puta veće od alfa spektrometrije, ali su i dalje za dva reda veličine niže od granica za gama spektrometriju.

^{210}Pb je moguće kvantifikovati preko potomka ^{210}Bi detekcijom Čerenkovljevog zračenja nakon uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između ^{210}Pb i ^{210}Bi u uzorku, što iznosi otprilike 40 dana. Oovo se, na primer, može odvojiti i očistiti kao olovni sulfat iz uzorka koji se zatim rastvori u 12 ml alkalnog EDTA rastvora i broji posle jednog meseca na LS brojaču. Nema potrebe za odvajanjem ^{210}Bi od ^{210}Pb , jer nema smetnji (^{210}Pb ne može proizvesti Čerenkovljevo zračenje zbog niskih energija elektrona koje oovo emituje) [Al-Masri et al., 1997].

Prednost Čerenkovljevog brojanja leži stoga u jednostavnoj pripremi uzorka, ali ima i manju efikasnost brojanja u odnosu na LSC [Villa et al., 2006], koja iznosi oko 15% [Wang et al., 2018]. Za razliku od LSC tehnika, pri detekciji Čerenkovljevo zračenje nema hemijskog prigušenja jer se ne koriste scintilacioni kokteli, i takođe ima nizak nivo background-a, a detekcioni limiti mogu iznositi do 5.1 mBq/l za uzorak 1 l took 500 min brojanja [Al-Masri et al., 1997].

Izloženost stanovništva ^{210}Pb i procena rizika. Zakonska regulativa

Radionuklid ^{210}Pb je beta emiter i njegova merenja u vodenim uzorcima su od velikog značaja za razne oblasti, često se uključuju u procene zdravstvenog rizika, dok su sadržaji ^{210}Pb i ^{210}Po (alfa emiter, njegov potomak) izuzetno relevantni u geohronologiji i studijama dinamike rečnog i morskog okruženja. Ove aplikacije zahtevaju razvoj brzih i robustnih tehnika za određivanje vrlo niskih prirodnih koncentracija ^{210}Pb [Villa et al., 2007].

Radiotoksičnost ^{210}Pb rezultat je njegovog relativno dugog radiološkog poluživota u poređenju sa procesima životne sredine, hemijskih sličnosti sa zemnoalkalnim elementima i velike energije koju emituju njegovi potomci, što je izazvalo mnoge vladine organizacije da uključe stroge propise za izloženost ovom radionuklidu u njihovom zakonodavstvu [Lariviere et al., 2005].

Naime, prisustvo ^{210}Pb predstavlja radiološki rizik zbog dugog vremena boravka u ljudskom skeletu i značajno doprinosi skeletnoj dozi. Postoje procene da 8% prirodne unutrašnje doze zračenja za čoveka potiče od ^{210}Pb i ^{210}Po [UNSCEAR, 2000]. Otprilike 79% unutrašnje doze primljene ingestijom radionuklida koji pripadaju seriji urana i torijuma uzrokovano je ^{210}Pb i ^{210}Po [UNSCEAR 2000]. Apsorbovane doze iz ^{210}Pb uglavnom zavise od visokoenergetskih alfa čestica ^{210}Po , dok doprinos beta emisije ^{210}Pb i ^{210}Bi iznosi oko 10% ukupnoj dozi [Benedik i Vreček, 2001].

Procenjuje se da je prosečna ekvivalentna doza primljena od unutrašnje izloženosti $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ (unos ingestijom) oko 0,12 mSv godišnje [UNSCEAR, 2000]. ^{210}Pb se nakuplja u kostima, dok se ^{210}Po distribuira uglavnom na meka tkiva [L'Annunziata, 2012]. Glavni unos ^{210}Pb i ^{210}Po je kroz konzumaciju hrane i vode, osim kod pušača, čiji se unos može značajno povećati inhalacijom, jer ^{210}Pb i ^{210}Po postoje u duvanu [UNSCEAR 2000]. Srednji prehrambeni unos ^{210}Pb je oko 0,05 Bq dnevno, a za ^{210}Po je 1,3 puta veći [NRCP, 1987]. U Sjedinjenim Državama se procenjuje da ^{210}Pb i njegovi potomci doprinose godišnjoj ekvivalentnoj dozi od 0,14 mSv za kortikalnu i trabekularnu kost, 0,07 mSv za ćelije obloge kostiju i 0,014 mSv za crvenu srž i meka tkiva [NRCP, 1987].

Epidemiološke studije povezuju svako zračenje s određenim nivoom rizika. Kriterijum individualne doze od 0,1 mSv godišnje, *Individual Dose Criterion* (IDC), od unosa radionuklida prisutnih u piјačoj vodi predstavlja veoma nizak nivo rizika za koji se ne očekuje da će izazvati bilo kakav štetan uticaj na zdravlje, jer predstavlja mali dodatak prirodnom nivou, bez obzira na poreklo radionuklida [WHO, 2011]. Metodologija radiološke procene prepostavlja početni screening vode za piće kako za ukupnu alfa tako i za ukupnu beta aktivnost; ako su oni ispod 0,1 Bq/l i 1 Bq/l, respektivno, nisu potrebne dodatne akcije. Ako je bilo koji od screening nivoa prekoračen, koncentracije pojedinih radionuklida treba odrediti i uporediti sa odgovarajućim referentnim nivoima datog radionuklida.

Ako je zadovoljena sledeća aditivna formula, nisu potrebne dodatne akcije:

$$\sum i \frac{c_i}{GL_i} \leq 1 \quad (4.1)$$

gde je C_i izmerena koncentracija aktivnosti radionuklida i (u ovom slučaju ^{210}Pb), GL_i referentni nivo radionuklida i , predstavlja koncentraciju nekog radionuklida koja, ako postoji u vodi za piće koja se konzumira tokom jedne godine, na unosu 2 l dnevno, rezultiraće efektivnom dozom od 0,1 mSv godišnje.

Svetska zdravstvena organizacija preporučuje da sadržaj ^{210}Pb u vodi za piće ne pređe 100 mBq/l [WHO, 2011]. Referentni nivoi radionuklida u vodi za piće izračunati su korišćenjem sledeće jednačine:

$$GL = \frac{IDC}{h_{ing} \cdot q} \quad (4.2)$$

gde je h_{ing} dozni koeficijent za unos kod odraslih osoba ($6,9 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq u slučaju ^{210}Pb), q je godišnja ukupna količina vode za piće, koja se prepostavlja da je 730 l godišnje (na unosu 2 l dnevno). Stoga izvršena procena efektivne doze iz unosa (Sv) određenog uzorka vode za piće, zbog prisustva ^{210}Pb , može se izračunati za odrasle osobe iz koncentracije aktivnosti ^{210}Pb dobijene za taj uzorak:

$$E(^{210}\text{Pb}) = h_{ing} C(^{210}\text{Pb}) q \quad (4.3)$$

Tabela 3. Granice detekcije radionuklida u vodi propisane Evropskom komisijom (European Council, 2013) Council Directive 2013/51/EURATOM.

Radionuklidi	Izvedena koncentracija Bq/l
Tritium	10 Bq l ⁻¹
Radon	10 Bq l ⁻¹
Gross alpha activity	0.04 Bq l ⁻¹
Gross beta activity	0.4 Bq l ⁻¹
²³⁸ U	0.02 Bq l ⁻¹
²³⁴ U	0.02 Bq l ⁻¹
²²⁶ Ra	0.04 Bq l ⁻¹
²²⁸ Ra	0.02 Bq l ⁻¹
²¹⁰ Pb	0.02 Bq l ⁻¹
²¹⁰ Po	0.01 Bq l ⁻¹
¹⁴ C	20 Bq l ⁻¹
⁹⁰ Sr	0.4 Bq l ⁻¹
²³⁹ Pu/ ²⁴⁰ Pu	0.04 Bq l ⁻¹
²⁴¹ Am	0.06 Bq l ⁻¹
⁶⁰ Co	0.5 Bq l ⁻¹
¹³⁴ Cs	0.5 Bq l ⁻¹
¹³⁷ Cs	0.5 Bq l ⁻¹
¹³¹ I	0.5 Bq l ⁻¹

S druge strane, prema evropskom zakonu, međunarodni referentni nivo utvrđen za prirodni sadržaj ²¹⁰Pb u pijačoj vodi postavlja se na 200 mBq/l [Direktiva Saveta 2013/51 / Euratom]. Uslov u pogledu karakterističnih performansi same analitičke metode merenja je taj da ona mora biti u najmanju ruku sposobna da meri koncentracije aktivnosti ²¹⁰Pb sa granicom detekcije 20 mBq/l [Direktiva Saveta 2013/51 / Euratom]. Tabela 3 prikazuje ove zahteve prilikom detekcije različitih radionuklida u vodi.

Minimalna i maksimalna prijavljena godišnja ekvivalentna doza ²¹⁰Po iz vode za piće su $2 \cdot 10^{-5}$ mSv i 3,9 mSv [Persson, 2014].

Zakonska regulativa RS

Granice sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima i drugoj robi koja se stavlja u promet određene su granicom izlaganja jonizujućim zračenjima, ukoliko nije drugačije određeno i količinom vode ili životnih namirnica koje se konzumiraju u toku godine i jednake su izvedenim koncentracijama radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima. Za predmete opšte upotrebe propisani parametar je granica izlaganja. Za građevinski materijal se propisuju gama indeks i referentni nivo spoljašnjeg zračenja u zatvorenom prostoru. U tabeli 4 dat je pregled referentnih nivoa različitih radionuklida u pijaćoj vodi.

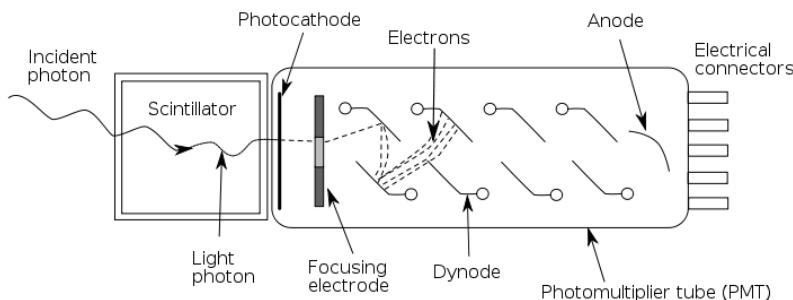
Tabela 4. Izvedene koncentracije pojedinačnih radionuklida u vodi za piće (Službeni glasnik RS)

	Radionuklid	Izvedene koncentracije [Bq/l]
Prirodni radionuklidi	U-2382	3.0
	U-2342	2.8
	Ra-226	0.5
	Ra-228	0.2
	Pb-210	0.2
	Po-210	0.1
Veštački radionuklidi	C-14	240
	Sr-90	4,9
	Pu-239/Pu-240	0.6
	Am-241	0.7
	Co-60	40
	Cs-134	7.2
	Cs-137	11
	I-131	6.2

5. Scintilacioni detektori

Gajger i Marsden su prvi koristili ovaj tip scintilacionog detektora u eksperimentu gde su rasejane alfa čestice uočavane preko scintilacionog svetla koje su proizvodile na ZnS ekranu. Različiti materijali su različito delovali na ionizujuće zračenje, kada su otkrili materijale koji su prozirni za sopstvenu svetlost, dobijena je mogućost da se naprave scintilacioni detektori kod kojih bi cela zapremina bila obuhvaćena ionizujućem zračenjem, a ne samo njihova površina. Ova vrsta detektora je bila neophodna za registrovanje beta i gama zračenja zbog velike prodorne moći (gama) jer je njima potrebna veća zapremina da bi doživeli interakcije.

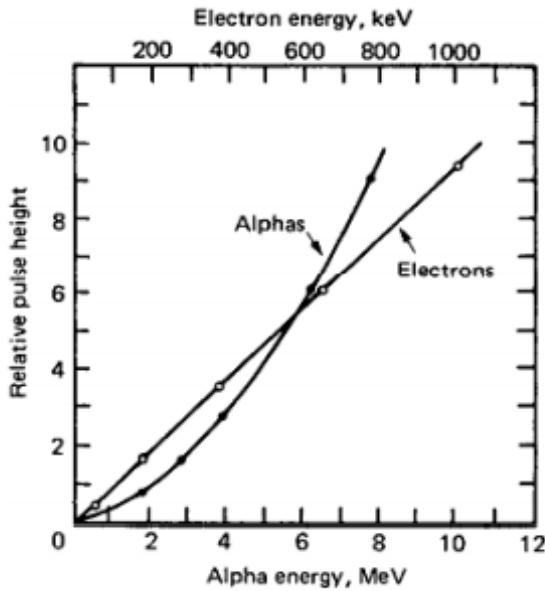
Princip rada ovih detektora bazira se na luminescenciji tečnih, čvrstih i gasovitih materijala pod dejstvom ionizujućeg zračenja. Luminescencija koja je izazvana dejstvom ionizujućeg zračenja, pretvara se pomoću fotomultiplikatora u odgovarajući električni impuls (slika 13), koji se dalje pomoću elektronskih uredjaja pojačava.



Slika 14. Fotomultiplikatorska cev

Scintilacioni brojač se sastoji od samog scintilatora koji može biti u obliku monokristala, fotomultiplikatora i elektronskog uređaja za pojačavanje i obradu signala. Deo ispitivanog zračenja se u scintilatoru pretvara u kvante svetlosti, čiji broj zavisi od tipa zračenja i materijala scintilatora. Velika zastupljenost ovih uređaja je posledica njihovih sledećih osobina:

1. Velika brzina i kratko vreme razlaganja
2. Velika efikasnost u odnosu na gasne brojače
3. Dva režima rada- spektrometri čestica i spektrometri određivanja energija zračenja



Slika 15. Prikaz signala kod plastičnih scintilatora

Scintilatori se dele na:

1. **Organske** - u obliku kristala, rastvaraju se u čvrstoj prozirnoj plastici(plastični scintilatori) kao i u organskim tečnostima (tečni scintilatori)

Čvrsti organski - monokristali organskih jedinjenja, gde se najčešće koriste antracen i stiben. Pristustvo aktivatora nije potrebno, pogodni za detekciju nanelektrisanih čestica i brzih neutrona preko uzmagnutog protona. Osetljivi na gama zrake, loša energetska rezolucija.

Plastični organski - sastoje se iz čvrstih rastvora i za detekciju gama, beta, alfa čestica i brzih neutrona. Slična svojstva kao tečni organski, ali je prednost u tome jer se ne stavljuju u merne viale, moguće ih je praviti u raznim oblicima i geometrijama (folije i vlakna) pokazuju intertnost prema vodi, vazduhu, mnogim hemikalijama, pa mogu direktno da reaguju sa radioaktivnim uzorkom. Visina signala u zavisnosti od energije alfa i beta čestica kod ovih scintilatora prikazana je na slici 15.

2. **Neorganske** - monokristali alakalnih metala sa malom koncentracijom nečistoća

Transformacija izgubljene energiju u svetlost se naziva konverzija, a definiše se kao odnos izmedju izgubljene energije čestice po jediničnom putu na izračenu svetlost i odgovarajuće izgubljene energije na ionizaciju, data je izrazom:

$$C = \frac{(\frac{dE}{dx})_{sv}}{(\frac{dE}{dx})_{ion}}, \quad (5.1)$$

gde oznaće *sv* i *ion* određuju tip transformacione energije.

Kvalitet samog scintilatora izražava se svetlosnim prinosom, što je svetlosni prinos veći, laksa je detekcija čestice. Sam prinos zavisi od vrste energije čestice. Kod većine scintilatora sam svetlosni prinos je u slučaju elektrona ili gama zraka proporcionalan energiji, dok se ova proporcionalost gubi kod teških čestica.

Vreme gorenja t – od trenutka kada nanelektrisana čestica zapali kristal-scintilator, posle 10^{-12} s, emitovana svetlost dostiže maksimalnu vrednost. Posle vremena t koje je duže od t_0 (10^{-12} s), emisija svetlosti opada po eksponencijalnom zakonu:

$$K = K_0 e^{-(\frac{t}{\tau})} \quad (5.2)$$

Talasna dužina emitovane čestice mora odgovarati maksimumu spektralne osjetljivosti fotokatode fotomultiplikatora, zbog kvaliteta transformacije u struju.

Tabela 5. Prikaz izgubljene energije(C) u procentima u zavisnosti od gustine materijala scintilatora (ρ) i talasne dužine zračenja(λ) za vreme gorenja (t)

Scintilator	ρ [$\frac{g}{cm^3}$]	λ[nm]	t[s]	C [%]
Antracen	1.25	440	2.7×10^{-8}	4.2
Stilben	1.15	410	$(2-3) \times 10^{-8}$	2.8
Nal(Tl)	3.67	410	2.5×10^{-7}	8
ZnS(Tl)	4.1	450	1×10^{-5}	28

Scintilatori koji su danas najviše u upotrebi: Nal(Tl), CsI(Tl) i LiI(Eu). Karakteristike nekih scintilatora su date u tabeli 5.

Tečni organski scintilatori

Rastvaranjem primarnih organskih scintilatora u odgovarajućim rastvaračima dobijaju se tečni organski scintilatori. Efikasan energetski transfer od molekula rastvarača (kao aktivatori u neorganskim scintilatorima) je ključan. Potrebno je držati ih u zatvorenim bocama, jer i malo pristupstvo rastvorenog kiseonika, kod ovih tipova scintilatora deluje kao prigušivač, pri čemu znatno može smanjiti efikasnost detekcije. Otporniji su na intenzivniju radijaciju od čvrstih i plastičnih scintilatora jer nemaju čvrstu rešetku (čak do 105 Gy). Primena im je u eksperimentima gde je potrebno koristiti detektore velike zapremine.

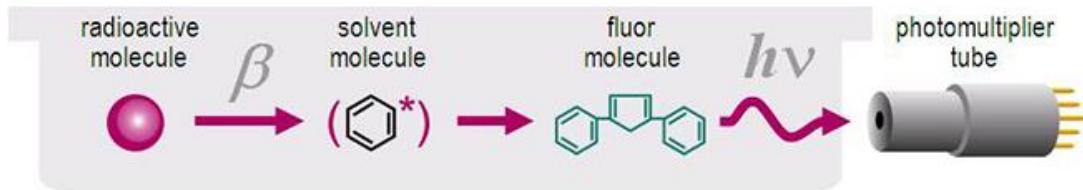
Sam proces rastvaranja radioizotopa u ovim scintilatorima, same emitovane čestice koje prolaze kroz ovaj scintillator mogu se detektovati sa efikasnošću do 99%, jer je obezbedjena 4π geometrija. Imaju primenu kod merenja niskoenergetskih beta emitera, detekcije kosmičkih zraka i snimanja neutronskog energetskog spektra u opsegu do nekoliko MeV-a.

Idealan scintilacioni materijal trebalo bi da poseduje sledeća svojstva:

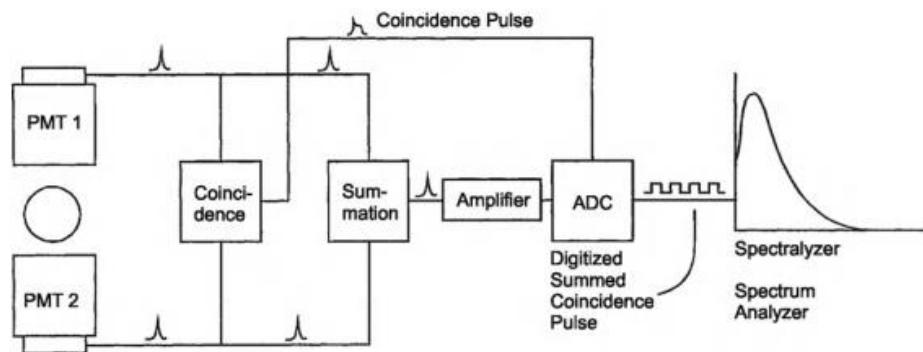
1. Pogodnost za interakciju sa nuklearnim zračenjem
2. Što bolju konverziju kinetičke energije u detektabulu svetlost
3. Konverzija treba da bude linearna
4. Medijum trasnparentan
5. Vreme raspada što kraće
6. Dobre optičke karakteristike
7. Indeks refrakcije kao kod stakla
8. Scintilator da ima što bolju rastvorljivost i što manje osetljiv na supstance prigušivača

Metodi tečne scintilacione spektroskopije

Scintilacioni proces koji se odvija u mernom vialu (ekscitacija scintilatora koji je pomešan sa uzorkom), nakon kojeg sledi detekcija emitovane svetlosti u PMT-u prikazani su na slici 15. Principijelna šema tečnog scintilacionog brojača prikazana je na slici 16. Krug između cevi za fotomultiplikaciju PMT1 i PMT2 predstavlja bočicu koja sadrži uzorke i scintilacioni koktel.



Slika 16. Princip scintilacionog procesa u LS brojaču



Slika 17. Šematski prikaz komponenti tečnog scintilacionog detektora. (Kesslera, 1989, 1998e2010, PerkinElmer, Inc.)

Quantulus 1220

Quantulus 1220 je tečni scintilacioni dektektor proizvođača Perkin Elmer, napravljen sa mogućnošću merenja izrazito niske energije veštačkih, kosmičkih i drugih prirodnih radionuklida. Upotrebljava se u svrhu detekcije α -, β - i γ -zračenja, X-zraka, Čerenkovljevog zračenja, Auger-ovih elektrona i luminiscencije.

Uređaj je visine 156 cm, dužine 101 cm, dužine 92 cm, a težak je 1000 kg (slika 18). Frekvencije na kojima uređaj može da radi se kreću od 50-60 Hz, pod naponom od 100, 115, 120, 220, 240 V. Da bi Quantulus 1220 radio, potrebno je da budu ispunjeni optimalni spoljašnji uslovi, kao što je vlažnost vazduha od 75 % i temperatura od oko 30°C.

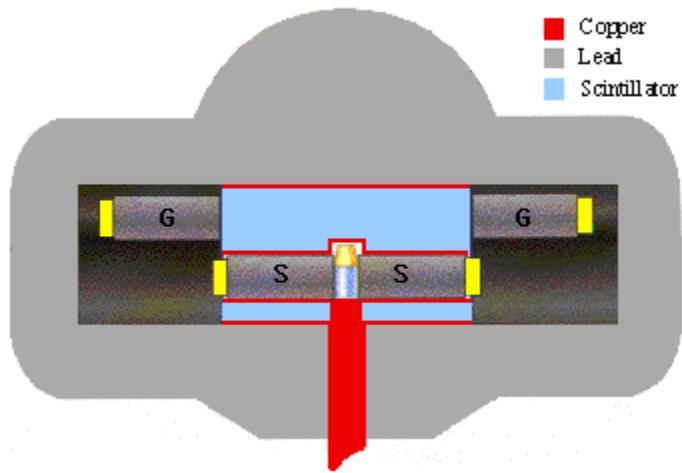


Slika 17. Izgled Quantulusa 1220

Uređaj poseduje zaštitu koja je podeljena na aktivnu i pasivnu (slika 18), što je osnova izuzetno niskog fona prilikom merenja. Sloj olova niske radioaktivnosti i sloj bakra čine pasivnu zaštitu. Uloga olova jeste da atenuira veliku količinu γ -zračenja iz okoline, kao i kosmičko zračenje. Težina ovog sloja je 600 kg, a dimenzije su: širina 20 cm iznad komore za merenje, sa donje strane komore debљina je 15 cm, i sa bočnih strana 7-11 cm (olovna zaštita prikazana je i na slici 20). Sloj bakra atenuira termalne neutrone i X-zračenje stvoreno u olovnoj zaštiti i ne dozvoljava prolazak X-zraka do scintilacione tečnosti.

Quantulus poseduje dva fotomultiplikatora za koincidentno snimanje signala, kao i dva koja se koriste za detekciju pozadinskih efekata i rade u antikoincidenciji sa prvim parom PMT-a. Aktivna zaštita se sastoji od tečnog scintilatora na bazi mineralnih ulja, ona se nalazi oko merne komore sa uzorkom za analizu i čini je asimetrični štit koji funkcioniše kao beta detektor pozadinskog zračenja.

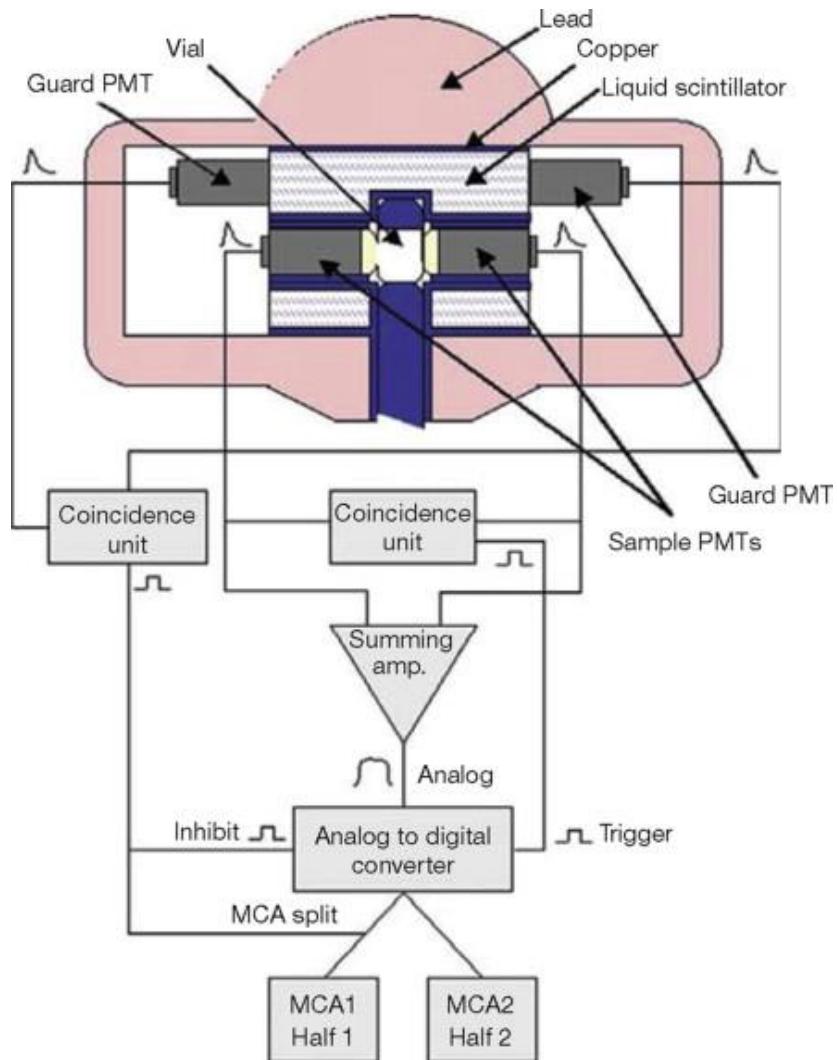
Aktivna zaštita funkcioniše na sledeći način: ukoliko oba para fotomultiplikatora detektuju scintilacionu svetlost, ta svetlost se morala emitovati pri prolasku čestica background-a i kroz scintillator na bazi mineralnih ulja i kroz scintillator u mernom vialu; dakle, nakon prikupljanja i obrade signala, oduzimaju su svi signali koji su detektovani od strane oba para PMT-a kao fon pri merenju. To znači da dva para PMT-a rade u antikoincidentnom režimu. Aktivna zaštita, redukujući pozadinske efekte, daje informacije o gama i kosmičkom zračenju. To sve postiže bez gubitaka u efikasnosti detekcije.



Slika 19. Princip pasivne i aktivne zaštite detektora: S-par fotomultiplikatora koji rade u koincidenciji i snimaju događaje iz uzorka, G- par fotomultiplikatora iz aktivne zaštite koji rade u antikoincidentiji sa S-parom fotomultiplikatora

Princip rada

Kako bi se prikupili i obradili podaci na Quantulus-u, potrebno je podesiti nekoliko parametara i obezbiti adekvatne uslove merenja. Na pouzdanost dobijenih rezultata utiču statistika brojanja, stabilnost uzoraka, promena efikasnosti detektora usled mogućeg prigušenja u uzorku (*quench* efekata), kao i podešavanje određenih optimalnih parametara koji su karakteristični za datu metodu merenja. Princip merenja (slika 20) se zasniva na korišćenju više *MCA* (*MultiChannel Analyzer*), kako bi se podaci što preciznije prikupili. *Quantulus 1220* se sastoji od dva *MCA*, oba su podeljena na dve polovine, stoga se nakon merenja dobijaju četiri spektra od po 1024 kanala rezolucije. Prvi *MCA* sadrži spektar iz aktivne zaštite, a drugi beleži spektre dobijene iz uzorka. Analiza dva višekanalna analizatora pruža informaciju o broju događaja, kao i o energetskoj distribuciji merenog izotopa. Svaki kanal sadrži energetsку distribuciju, a broj događaja je ukupan broj odbroja po kanalima. Time zaključujemo da višekanalni sistem podrazumeva sadržaj što većeg broja kanala i memorije koja može da skladišti što veću količinu podataka.



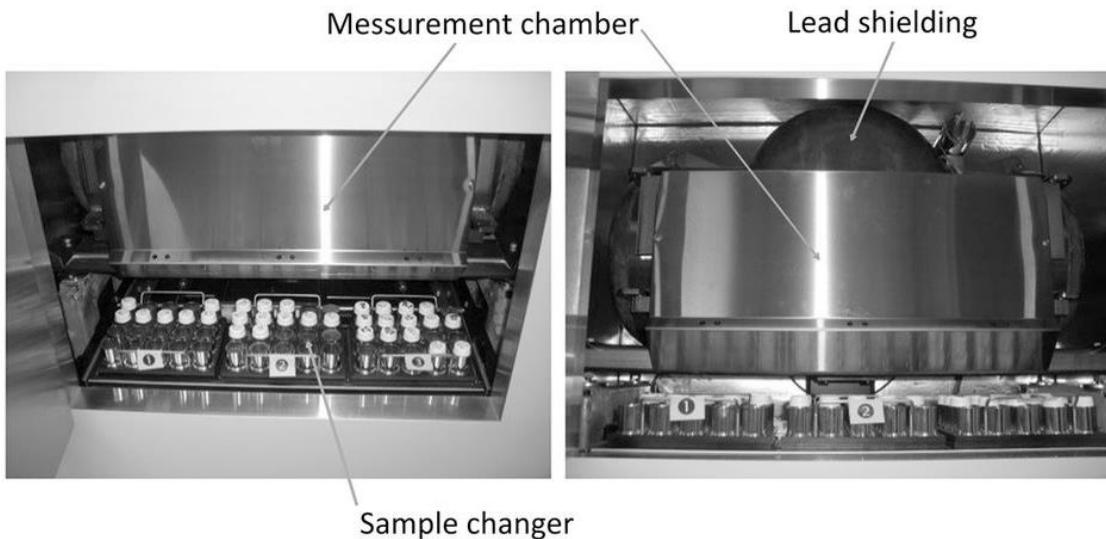
Slika 20. Princip merenja na Quantulus-u

Za funkcionalnost ovog sistema potrebni su sledeći elementi: A/D konvertor, komparator amplitude impulsa PAC (Pulse Amplitude Comparator), analizator oblika impulsa PSA (Pulse Shape Analysis), kolo za korekciju na hemiluminiscenciju DCOS (Delayed Coincidence Circuit) kao i mnogi drugi.

Funkcija *A/D konvertora* jeste da odredi visinu pulsa, pozicionira i memoriše, pri tome se podaci selektuju po odgovarajućim skalama. Pri ovako preciznom memorisanju, omogućena je analiza tačno određenih delova spektra, a s obzirom da prethodna merenja ostaju sačuvana, moguć je i prekid merenja u bilo kom trenutku. *PSA*, uz separaciju alfa i beta spektra, dodatno umanjuje pozadinske efekte. On identificiše čestice ionizujućeg zračenja i smanjuje background. *PAC* funkcioniše kao discriminator, koji smanjuje pozadinsko zračenje, nastalo mešanjem elektromagnetsnih signala u toku *LSC* merenja.

DCOS koriguje zakasnele koincidencije, a zatim ih šalje na višekanalni analizator, koji ga tretira kao hemiluminescentni spektar. Nakon toga se na preostale višekanalne analizatore šalje preostali signal i snima kao spektar uzorka.

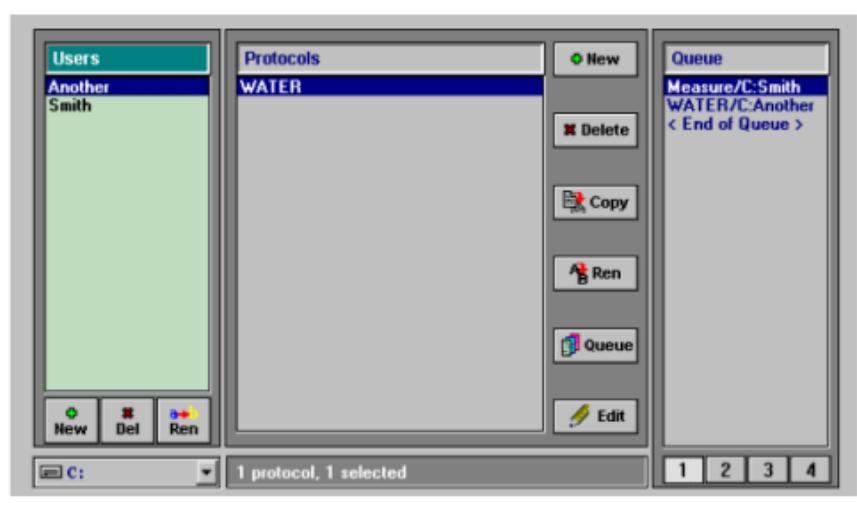
Uređaj sadrži tri tacne sa prostorom za bočice (slika 21), koje postavlja laborant. Materijal za izradu bočica, oblik i dimenzijs su propisane i u skladu sa standardom predviđenim za rad *Quantulus-a 1220*. Zapremina svake bočice je 20 ml, a one mogu biti napravljene od stakla ili plastike.



Slika 21. Tok premeštanja tacni sa bočicama i prostor za merenje

Preko računara i programa *WinQ* se saopštava naredba koja tacna će biti povučena na analizu. Ovaj program daje i informacije o dužini merenja i broju tacne i bočice za analizu, koje *Quantulus 1220* razlikuje po mestu postavljanja na tacni. Kada je tacna u centralnom delu uređaja, ona se namešta u položaj zadat programom i bočica sa uzorkom ulazi u centralni deo. Bočica se nakon isteka zadatog vremenskog trenutka vraća u prvobitni položaj, da bi sledeća istim postupkom došla na analizu.

Kada se pokrene program *WinQ*, otvara se prozor u koji se unose komande u vidu davanja naziva i definisanja protokola, (slika 22) U programu postoji opcija Queue, ona protokol uvrštava u posebnu kolonu (treću), to znači da je taj protokol zadat za analizu i prema definisanom nalogu u protokolu, uređaj pomera tacne i analizira bočice.



Slika 21. Izgled prozora u koji se unose komande za protokol

Definisanje protokola: pokretanjem opcije *New*, otvara se prozor sa zaglavljem *General Parameters*, dobija se informacija o nazivu protokola, mesta gde će biti sačuvani merenjem dobijeni podaci i broj ponavljanja merenja za jedan uzorak (bočicu).

Nakon toga se potvrdi naredbom *OK*, a zatim se podešavaju parametri u drugom zaglavlju *MCA & Window Settings*. Signali se dodaju iz oba fotomultiplikatora oko uzorka (signal *trigger L*R*), tada se istovremeno detektuje svetlost. Merenje se blokira kada se istovremeno detektuju i čuvaju (signal blokira *G*). Mesto gde se fotomultiplikatorima signali pojačavaju i registruju jeste višekanalni spektar (*MCA*).

Opcijom *Send spectar* vrši se selekcija spektra koji će biti sačuvan na disku. Zaglavljje *MCA* se sastoji iz dve verzije – *MCA1* i *MCA2*, obe verzije se dele na dva dela koja sadrže spektar, spektar je kodiran brojevima 11, 12, 21, 22. Na primer, Čerenkovljev spektar je sačuvan u Quantulus memoriji u SP11 spektru.

Coincidence Bias se koristi za biranje pragova pri merenju. *High Coincidence Bias* – ima funkciju merenja beta čestica visoke energije, *Low Coincidence Bias* – generiše spektar i beta čestica niskih energija.

Na dodatnu analizu pulsa mogu da utiču i elektronski dodaci, kao što su: *PAC (Pulse Amplitude Comparation)*, komparacija amplitude signala, analiza oblika signala i *PSA(Pulse Shape Analyzer)*. Treće zaglavljje, *Sample Parameters*, služi za unos podataka vezanih za poziciju, redosled i dužinu merenja bočica na tacnama.

6. Eksperiment i obrada rezultata

U sledećem odeljku je predstavljena tehnika kvantifikacije koncentracije aktivnosti ^{210}Pb preko merenja aktivnosti njegovog potomka ^{210}Bi , koji je visokoenergetski beta emiter, sposoban da generiše Čerenkovljevo zračenje u vodi. Granice detekcije su procenjene bez hemijske pripreme uzorka. Očigledne prednosti radioanalize ^{210}Pb bez prethodne hemijske obrade su bezbedno skladištenje analiziranih uzoraka prihvatljivo za životnu sredinu, jednostavnost i niska cena same metode. Glavni nedostatak metode je mešanje sa drugim radionuklidima koji mogu biti prisutni u uzorku ne može se potpuno razlučiti u spektru, s obzirom da Čerenkovljevo zračenje diskriminiše samo alfa i niskoenergetske beta emitere, ali drugi visokoenergetski beta emiteri, ako postoje u uzorku, superponirali bi se na spektar generisan od strane $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$. Najznačajniji problem je dakle, generisanje kumulativnog Čerenkovljevog spektra svih visokoenergetskih beta emitovanih čestica koji mogu biti prisutni u uzorku i mogu proizvesti Čerenkovljevu radijaciju, dominantno radijum ^{226}Ra i njegovi potomci. S obzirom da se uzorci analizirani predloženom metodom žele prikupiti na područjima gde bi se očekivalo prisustvo samo prirodnih radionuklida, a ne veštačkih (na primer, ^{90}Sr), njihovo mešanje ne treba ni da se razmatra.

Određivanje ^{210}Pb preko potomka ^{210}Bi Čerenkovljevim brojanjem je relevantno u uzorku nakon približno 40 dana (nakon 7-8 perioda poluživota ^{210}Bi), što je neophodan period za uspostavljanje radioaktivne ravnoteže između ^{210}Pb i ^{210}Bi u uzorku. Međutim, uočeno je da je nakon oko 25 dana odbroj stabilan jer je postignuto 97% sekularne ravnoteže [Mingote et al., 2005]. Jedini prijavljeni pokušaj u literaturi da se proceni potencijal takvog screening testa ^{210}Pb u uzorcima bez postupka hemijske izolacije ^{210}Pb dat je nedavno [Stojković i dr., 2020].

Vrsta boćice za brojanje i količina uzorka mogu uticati na fon. Korištene su polietilenske boćice, jer prisustvo ^{40}K u staklenim boćicama indukuje veći background nivo (nivo pozadinskog zračenja), dok se zadržava maksimalni kapacitet od

Kalibracija detektora urađena je na osnovu merenja 5 kalibracionih plastičnih viala sa destilovanom vodom u kojima je spajkovana različita aktivnost vodenog standarda ^{210}Pb , pri čemu je ukupna zapremina svakog uzorka iznosila 20 ml. Standard je proizведен u Češkoj (Czech Metrology Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation). Referentna aktivnost standarda iznosila je $A(^{210}\text{Pb}) = 29.55 \text{ Bq/ml}$, sa kombinovanom mernom nesigurnosti od 1.0%, na datum 1.10.2013:

$$A_{spec} = \frac{A_0}{V} = 29.55 \frac{\text{Bq}}{\text{ml}} \quad (6.1)$$

(zapremina standarda je $V=0.25 \text{ l}$, početna aktivnost na dan 1.10.2013. je $A_0=7.3875 \text{ Bq}$). Period poluraspađa olova uzet je sa sertifikata standarda da iznosi $T_{1/2}=8108 \text{ dana}$. Vreme proteklo od pripreme standarda do momenta merenja (26.10.2018) iznosilo je 1825 dana.

Specifična aktivnost kalibracionih viala u trenutku merenja (26.10.2018) računata je preko obrazaca (1.6) i (1.7) i iznosila je:

1. Vial1: $V= 20\mu\text{l}$ spajkovanog standarda, $A_{\text{spec}}=0.030 \text{ Bq/ml}$
2. Vial2: $V=50\mu\text{l}$ spajkovanog standarda, $A_{\text{spec}}=0.073 \text{ Bq/ml}$
3. Vial3: $V=100\mu\text{l}$ spajkovanog standarda, $A_{\text{spec}}=0.174 \text{ Bq/ml}$
4. Vial4: $V=400\mu\text{l}$ spajkovanog standarda, $A_{\text{spec}}=0.591 \text{ Bq/ml}$
5. Vial5: $V=1\text{ml}$ spajkovanog standarda, $A_{\text{spec}}=1.45 \text{ Bq/ml}$

Konfiguracija protokola merenja

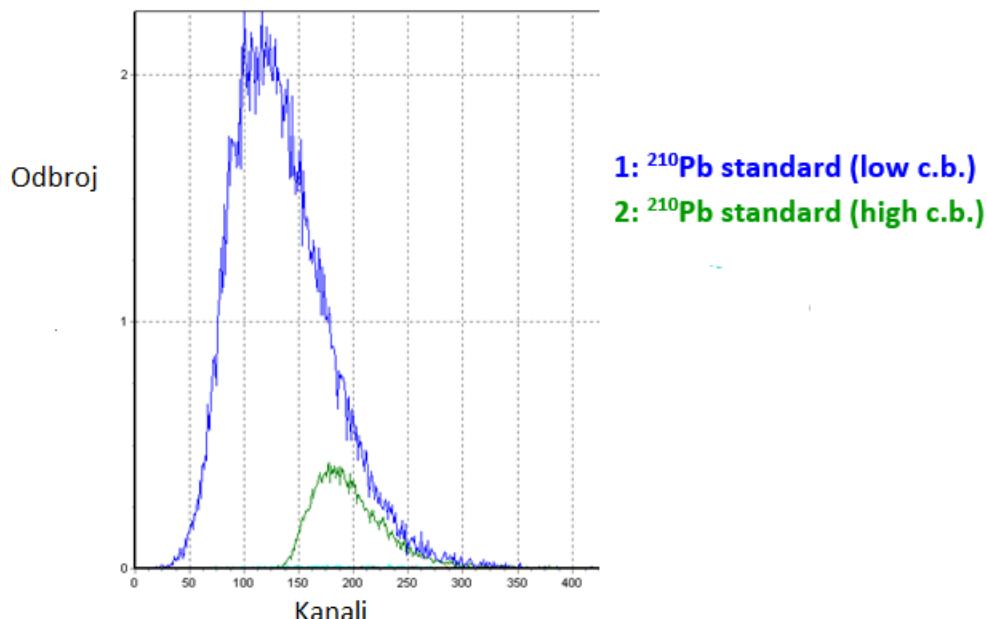
Protokol brojanja za detekciju Čerenkovljevog zračenja na Quantulus-u 1220 podešen je ručno. Konfiguracija podešavanja za merenje ^{210}Pb prikazana je u Tabeli 6. Okidač signala je postavljen na L^*R , što znači da se signal događaja dodaje generisanom spektru uzorka kada oba fotomultiplikatora koji okružuju uzorak istovremeno detektuju svetlost. Inhibicija signala G osigurava da se odbace signali koji dolaze od događaja zračenja koji se istovremeno detektuju i u zaštitnim fotomultiplikatorima i u fotomultiplikatorima oko uzorka. Signali fotomultiplikatora su pojačani i registrovani u višekanalnom spektru (MCA). Čerenkovljev spektar u memoriji Quantulus-a je sakupljen u SP11, dok su SP21 i SP22 spektri korišćeni za nadgledanje zaštitnog detektora i generisanje pozadinskih spektara.

Tabela 6. Konfiguracija protokola merenja

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

Analiza generisanog spektra $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ preko Čerenkovljevog zračenja

Kalibracioni uzroci i uzorci background-a su mereni na protokolu definisanim u tabeli 6, i to mereni su pri Coincidence Bias High (high c.b.), kao i pri Coincidence Bias Low (low c.b.). Otkrivena je suštinska razlika prilikom ova dva setup-a. Dobijeni spektri su prikazani na slici 23. Background spektar generisan na low c.b. je donekle moguće primetiti, dok su odbroji dobijeni na high c.b. vrlo mali i ne mogu se uočiti uz prikazane spektre aktivnih uzoraka.



Slika 23. ^{210}Pb Čerenkovljev spektar u destilovanoj vodi generisan na low i high c.b. protokolu

Čerenkovljev ^{210}Pb spektar u slučaju da je izabran high c.b. generisan je u uskom energetskom području, a prilikom merenja na low c.b. dobijena je mnogo bolja spektralna rezolucija, kao i veća osjetljivost detektora (s obzirom da je spektar na low c.b. dobijen sa daleko većim intenzitetom od spektra generisanog na high c.b.). Stoga je dalji razvoj metode zasnovan na merenju Čerenkovljevog spektra na low c.b.

Podešavanje optimalnog spektralnog prozora

Optimalan spektralni prozor podešen je prilikom merenja na c.b. low protokolu, tako da se dobije maksimalna vrednost Figure Of Merit (FOM) parametra, koji se računa preko formule:

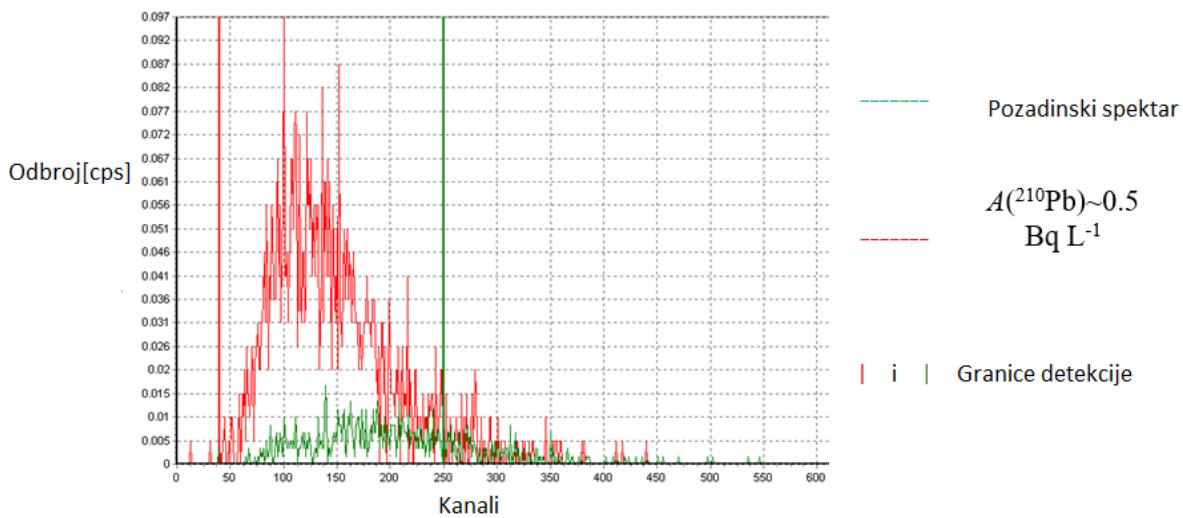
$$FOM[s] = \frac{\varepsilon^2}{N_B[\text{cps}]} \quad (6.2)$$

Rezultati dobijeni za različite opsege izabranih spektralnih prozora dati su u tabeli 7. Može se primetiti da se background nivo menja značajno sa promenom prozora (opada sa smanjenjem opsega kanala), dok efikasnost slabo zavisi od izbora granica (vrlo slabo opada sa smanjenjem opsega kanala). Granice spektra ne bi se smeće sužavati na račun smanjenja detekcije, te je izabran opseg od 40-250 kanala, kao optimalno rešenje sa dovoljno visokom efekisnošću, a zadovoljavajuće niskim nivoom background-a.

Tabela 7. Podešavanje optimalnog spektralnog prozora

Prozor [kanali]	Pozadinsko zračenje $N_B[\text{cps}]$	Efikasnost $\epsilon [\%]$		$FOM[s] = \frac{\epsilon^2}{N_B[\text{cps}]}$	
		$A=0.502(7)$ Bq	$A=25.1(4)$ Bq	$A=0.502(8)$ Bq	$A=25.1(7)$ Bq
1-1000	0.022(1)	16.5(6)			
40-450	0.021(1)	16.4(6)	14.56(5)	1.28 (6)	1.00(8)
40-430	0.021(1)	16.5(6)	14.562(3)	1.28(8)	1.00(8)
40-400	0.021(1)	16.6(7)	14.45(5)	1.28(5)	1.00 (8)
40-480	0.021(1)	16.5(7)	14.56(5)	1.28(5)	1.00(7)
45-300	0.021(1)	16.10(5)	14.47(5)	1.24(1)	0.98(7)
50-290	0.021(1)	16.00(7)	14.41(5)	1.204(6)	0.98(7)
50-280	0.021(1)	16.4(7)	14.37(23)	1.49(14)	1.14(7)
50-260	0.021(1)	15.4(6)	14.38(23)	1.56(14)	1.19(7)
50-270	0.0173(8)	16.4(7)	14.28(5)	1.13(1)	1.00(7)

Na slici 23 prikazan je ^{210}Pb spektar zajedno sa background-om i granicama optimalnog prozora.



Slika 24. Spektar Černekovljevog zračenja $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ i background spektar.

Kalibracija detektora

Određivanje efikasnosti detekcije je izvršeno preko formule:

$$\varepsilon = \frac{N_S - N_B}{A} \frac{[cps]}{[Bq]} \quad (6.3)$$

gde su: N_S - odbroj uzorka,

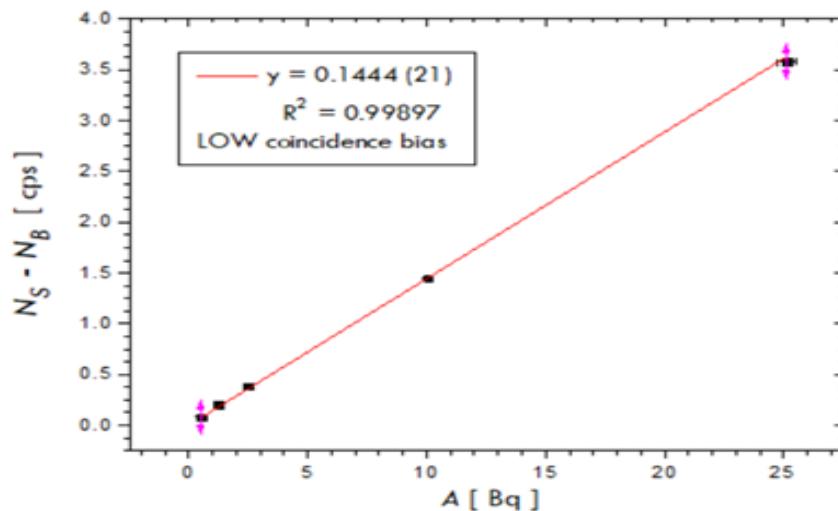
N_B – odbroj background-a,

A-aktivnost kalibracionog uzorka.

Merna nesigurnost efikasnosti $\delta\varepsilon$ dobijena je kao standardna devijacija, na osnovu mernih nesigurnosti odbora, δN_S i δN_B i merne nesigurnosti aktivnosti standarda, δA :

$$\delta\varepsilon = \sqrt{\frac{1}{A^2} (\delta N_S^2 + \delta N_B^2) + \left(\frac{(N_S - N_B)^2 \delta A^2}{A^2} \right)} \quad (6.4)$$

Efikasnost detekcije ^{210}Pb preko Čerenkovljevog zračenja dobijena je da iznosi 14,44 (21)%, i određena je kao nagib linearne funkcije odbroja kalibracionih uzoraka u odnosu na njihovu aktivnost (slika 24). Ovi nalazi su u dobrom saglasju s nekoliko prethodnih izveštaja o detekciji $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ preko Čerenkovljevog zračenja: efikasnost je bila u opsegu od 10% [Johansson, 2008] do 20% [Al-Masri i sar., 1997].

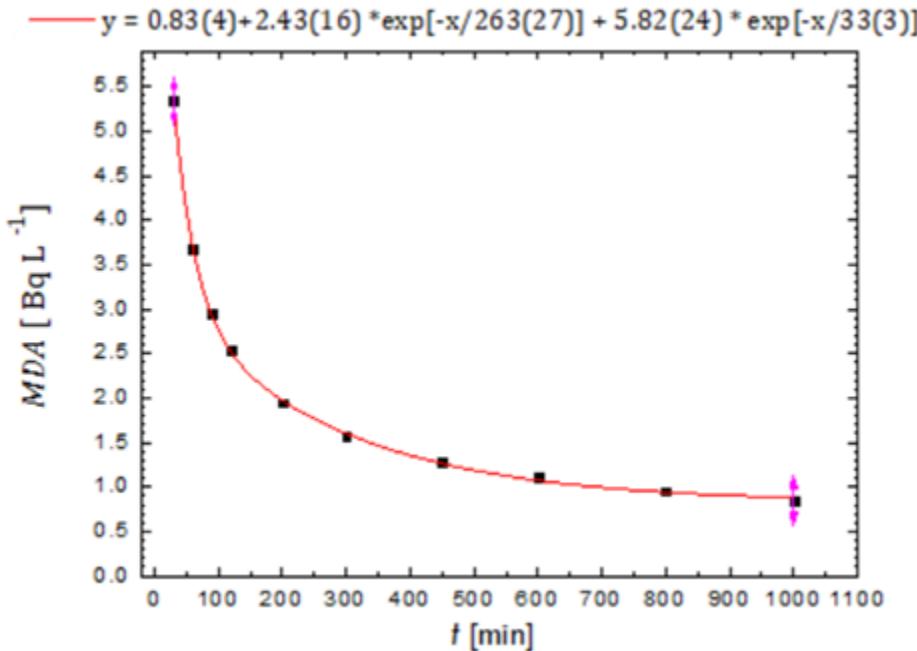


Slika 25. Kalibracija detektora

Prag detekcije

Parametar Minimalne Detektibilne Aktivnosti (MDA) [Bq/l] je procenjen preko Kirijeve formule,

$$MDA = \frac{2.71 + 4.65 \sqrt{N_B t_0}}{\varepsilon V t_0} \quad (6.5)$$



Slika 25. Grafički prikaz eksponencijalne zavisnosti MDA od vremena merenja

MDA vrednost zavisi od vremena merenja background-a t_0 [s]. U eksperimentu je background vial (20 ml destilovane vode) meren više puta, pri čemu je vreme brojanja uzimano od 30 min do 1000 min. Efikanost detekcije je uzeta kao 14.44 %. Dobijeni rezultati su prikazani na slici 25. Eksperimentalno utvrđeno ponašanje MDA, koje je zavisno od trajanja merenja t_0 , može se fitovati eksponencijalnom jednačinom:

$$MDA(t_0) = 0.83(4) + 2.43(16) \cdot e^{-t_0/263(7)} + 5.82(24) \cdot e^{-t_0/33(3)}. \quad (4.9)$$

Analiza kalibracionih parametara za $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ detekciju

Dobijeni parametri tokom razvoja metode sumirani su u tabeli 8. Vrednost efikasnosti detekcije je bila očekivana na osnovu podataka dostupnih u literaturi iz drugih laboratorija, i na nju se ne može uticati. MDA parameter je suviše visok da bi se metoda primenila u slučaju merenja prirodnih nivoa ^{210}Pb u uzorcima voda.

MDA zavisi od vremena merenja, kao i od zapremine ispitivanog uzorka. Producavanjem vremena merenja moguće je do izvesne mere sniziti postignuti prag detekcije. Druga mogućnost je povećanje zapremine analiziranog uzorka. Međutim, s obzirom da je maksimalna zapremina mernih viala 20 ml, jedina opcija je uparavanje većih zapremina uzoraka do 20 ml, pri čemu se MDA vrednost može značajno umanjiti. Na primer, uparavanjem 1 l uzorka do 20 ml, MDA se može smanjiti 50 puta (pri čemu bi iznosila 17 mBq/l), pošto uparavanje uzorka neće uticati na odbor dobijenog uzorka background-a. Iako uparavanje zahteva dodatnu pripremu uzorka, pruža mogućnost primene ove metode u praksi.

Tabela 8. Parametri razvijene metode ^{210}Pb detekcije

Coincidence bias	ε [%]	MDA [Bq/l] za $t_0=1000$ min	FOM[s]	ROI
Low	14.44(21)	0.85	1.30	40-250 ch

Na osnovu izvedenih eksperimenata, može se izvesti zaključak da je metodu detekcije ^{210}Pb putem Čerenkovljevog zračenja koje generiše njegov potomak ^{210}Bi u uzorcima voda moguće primeniti samo kao screening test. To znači da se metoda može koristiti u svrhe monitoringa uzorka iz životne sredine, i da je njenom primenom moguće detektovati aktivnosti koje premašuju granice propisane zakonskim regulativama. Metoda se može koristiti u slučaju analize voda koje se nalaze u okolini rudnika i uopšte, lokaliteta na kojima se očekuju znatno povišene koncentracije prirodnih radionuklida.

Zaključak

Radionuklid ^{210}Pb nalazi se u prirodi kao član radioaktivnog niza urana ^{238}U . Poreklo ^{210}Pb u vodama, jezerima i okeanima (na dubinama do ~ 100 m) je u atmosferskoj depoziciji koja se dešava nakon emanacije njegovog pretka ^{222}Rn iz zemljишta, kao i u direktnoj njegovoj produkciji iz rastvorenog pretka ^{226}Ra u podzemnim vodama. Merenja sadržaja ^{210}Pb popularna su, pre svega, radi procena zdravstvenog rizika i doza koje primi stanovništvo ingestijom hrane i vode koja sadrži ovaj radionuklid, iako se ^{210}Pb i ^{210}Po sve češće mere u uzorcima iz mora i okeana radi proučavanja raznih dinamičkih procesa.

Postoji nekoliko metoda detekcije ^{210}Pb u laboratorijama, od kojih svaka nudi prednosti, ali neminovno nosi i neke nedostatke: direktno određivanje sadržaja ^{210}Pb putem gama-spektrometrije, kao i indirektna merenja aktivnosti njegovih potomaka, ^{210}Po (alfa-spektrometrijskim metodama), i ^{210}Bi (metodama tečne scintilacione spektroskopije in a gasnim proporcionalnim brojačima).

U ovom radu prikazana je mogućnost merenja ^{210}Pb u uzorcima u kojima je postignuta radioaktivna ravnoteža $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$, i to putem detekcije Čerenkovljevog zračenja u LS brojaču Quantulus 1220. Metoda podrazumeva čekanje uspostavljanja $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ ravnoteže, odmeravanje 20 ml uzorka u merni vial i njegovo brojanje u Quantulus-u. Prednost ove metode, pored toga što ne zahteva skupu opremu i što nije destruktivna, je u njenoj jednostavnosti. Uzorci ne zahtevaju nikakvu hemijsku pripremu, niti mešanje sa scintilacionim koktelima. Tokom merenja nema smetnji poput hemiluminescencije. Uspostavljanje $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ ravnoteže najvećim delom se dešava za 25 dana od uzorkovanja. Nedostatak metode je mogućnost interferencije drugih prirodnih radionuklida koji takođe mogu generisati Čerenkovljevo zračenje u vodi, dominantno ^{226}Ra .

Kalibracija detektora je sprovedena merenjem nekoliko viala koji su sadržali destilovanu vodu sa različitim koncentracijama aktivnosti spajkovanog ^{210}Pb standarda. Konfiguracija protokola za detekciju Čerenkovljevih fotona je podešena ručno, i na osnovu snimljenih spektara, odabran je *low coincidence bias*. Podešen je optimalan spektralni prozor, od 40-250 kanala. Vrednost efikasnosti detekcije je 14.44(21)%.

Dobijeno je da MDA parameter iznosi 0.85 Bq/l, što je neadekvatno za primenu metode u slučaju merenja dosta nižih prirodnih nivoa ^{210}Pb u uzorcima voda. Zakonski utvrđena granica u Srbiji za koncentraciju aktivnosti ^{210}Pb u piјačoj vodi iznosi 0.2 Bq/l.

MDA je moguće sniziti produžavanjem vremena merenja. Drugi, efikasniji način je povećanje zapremine analiziranog uzorka, pri čemu bi se veće zapremine uparavale do 20 ml. Ako bi se 1 l vode upario do 20 ml, MDA bi se smanjila 50 puta i tada bi iznosila 17 mBq/l.

Metodu detekcije $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ putem Čerenkovljevog zračenja u uzorcima voda moguće primeniti samo kao screening test prilikom monitoringa uzorka iz životne sredine. Ona je efikasna samo za detekciju aktivnosti koje premašuju granice propisane zakonskim regulativama, u slučaju analize voda koje se nalaze u okolini rudnika i uopšte, lokaliteta na kojima se očekuju znatno povišene koncentracije prirodnih radionuklida.

Literatura

- Al-Masri, M.S., Hamwi, A., Mikhlallaty, H., 1997. Radiochemical determination of lead-210 in environmental water samples using Cerenkov counting. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 219(1), 73-75. <https://doi.org/10.1007/BF02040268>.
- Benedik, L., Jeran, Z., 2012. Radiological of natural and mineral drinking waters in Slovenia. *Radiat. Prot. Dosim.* 151(2), 306–313. <http://dx.doi.org/10.1093/rpd/ncs009>.
- Benedik, Lj., Vreček, P., 2001. Determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in environmental samples. *Acta. Chim. Slov.* 48(2), 199-213.
- Cook, N.J., Ehrig, K.J., Rollog, M., Ciobanu, C.L., Lane, D.J., Schmandt, D.S., Owen, N.D., Hamilton, T., Grano, S.R., 2018. ^{210}Pb and ^{210}Po in Geological and Related Anthropogenic Materials: Implications for Their Mineralogical Distribution in Base Metal Ores. *Mineral-Basel*, 8(5), 211. <https://doi.org/10.3390/min8050211>.
- Council Directive 2013/51/EURATOM of 22 October 2013 laying down requirements for the protection of the health of the general public with regard to radioactive substances in water intended for human consumption, 2013. Official Journal of the European Union. L 296/12. <http://data.europa.eu/eli/dir/2013/51/oj>.
- Gibson, W.M., "The radiochemistry of Lead", NAS-NS Publication 3040, U.S. Atomic Energy Commission, Washington, 1961.
- Grahek, Ž., Rožmarić Mačefat, M., Lulić, S., 2006. Isolation of lead from water samples and determination of ^{210}Pb . *Anal. Chim. Acta* 560 (1-2), 84-93. <https://doi.org/10.1016/j.aca.2005.12.057>.
- Horwitz, E.P., Dietz, M.L., Rhoades, S., Felinto, C., Gale, N.H., Houghton, J., 1994. A lead-selective extraction chromatographic resin and its application to the isolation of lead from geological samples. *Anal. Chim. Acta* 292(3), 263–273. [https://doi.org/10.1016/0003-2670\(94\)00068-9](https://doi.org/10.1016/0003-2670(94)00068-9).
- Instrument Manual., 2002. "Wallac 1220 Quantulus – Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer". PerkinElmer, 1220-931-06, Finland.
- Johansson, L.Y. 2008. "Determination of Pb-210 and Po-210 in aqueous environmental samples" (Doctoral dissertation). Retrieved from <https://www.nrc.gov/docs/ML1105/ML110560301.pdf>.
- Katzlberger, C., Wallner, G., Irlweck, K., 2001. Determination of Pb-210, Bi-210 and Po-210 in drinking water. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 249(1), 191–196. <https://doi.org/10.1023/A:1013230124145>.
- Krmar, M. (2013). Uvod u nuklearnu fiziku. Novi Sad: Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno matematički fakultet

L'Annunziata, M.F. "Handbook of Radioactivity Analysis", Academic Press, 2012, 3rd edition.
ISBN: 9780123848741.

Larivière, D., Reiber, K.M., Evans, R.D., Cornett, R.J., 2005. Determination of ^{210}Pb at ultra-trace levels in water by ICP-MS. *Anal. Chim. Acta.* 549, 188–196.
<https://doi.org/10.1016/j.aca.2005.06.020>.

Marinkov, L. (2010). Osnovi nuklearne fizike. Novi Sad: Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno matematički fakultet

Matthews, K.M., Kim, C.K., Martin, P., 2007. Determination of ^{210}Po in environmental materials: a review of analytical methodology. *Appl. Radiat. Isotopes.* 65, 267-279.
<https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.09.005>.

Mingote, R.M., Heeren de Oliveira, A., Gomes, N.C., 2005. Cerenkov counting: an alternative for determining ^{210}Pb low-levels. International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2005, Santos, SP, Brazil, August 28 - September 2, 2005. Associação Brasileira de energia nuclear- ABEN, ISBN: 85-99141-01-5.

NCRP (National Council on Radiation Protection and Measurements), 1987. Exposure of the Population in the United States and Canada from Natural Background Radiation. NCRP Report No. 94. Bethesda, MD: National Council on Radiation Protection and Measurements.

Nozaki, Y., Thomson, J., Turekian, K.K., 1976. The distribution of ^{210}Pb and ^{210}Po in the surface waters of the Pacific Ocean. *Earth. Planet. Sci. Lett.* 32(2), 304–312.
[https://doi.org/10.1016/0012-821X\(76\)90070-4](https://doi.org/10.1016/0012-821X(76)90070-4).

Persson, B.R.R., 2014. ^{210}Po and ^{210}Pb in the Terrestrial Environment. *Current Advances in Environmental Science (CAES)* 2(1), 22-37.

Persson, B.R.R., Holm, E., 2011. Polonium-210 and lead-210 in the terrestrial environment: a historical review. *J. Environ. Radioactiv.* 102(5), 420-9.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2011.01.005>.

Pfenning, G., Klewe-Nebenius, H., Seelmann-Eggebert, W., "Chart of the nuclides", 6th Ed., 1995. Revised reprint 1998.

Rama, Koide, M., Goldberg, E.D., 1961. Lead-210 in natural waters. *Science.* 134 (3472), 98–99.
<https://doi.org/10.1126/science.134.3472.98>.

Ross, H.H., 1969. Measurement of beta-emitting nuclides using Čerenkov radiation. *Anal. Chem.* 41(10), 1260-1265. <https://doi.org/10.1021/ac60279a011>.

Rožmarić, M., Rogić, M., Benedik, L., Štrok, M., 2012. Natural radionuclides in bottled drinking waters produced in Croatia and their contribution to radiation dose. *Sci. Total. Environ.* 437, 53–60. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2012.07.018>.

- Stojković, I., Todorović, N., Nikolov, J., Tenjović, B., Gadžurić, S., Tot, A., Vraneš, M., 2020. $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ detection in waters by Cherenkov counting – perspectives and new possibilities, Radiat. Phys. Chem. 166, 108474 <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108474>.
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) (Eds.): Sources and Effects of Ionizing Radiation: UNSCEAR 2000, Report of the General Assembly, with Annexes. New York, NY: UNSCEAR, 2000.
- Vajda, N., LaRosa, J., Zeisler, R., Danesi, P., Kis-Benedek, Gy., 1997. A novel technique for the simultaneous determination of ^{210}Pb and ^{210}Po using a crown ether. J. Environ. Radioactiv. 37(3), 355–372. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(95\)00059-J](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(95)00059-J).
- Villa, M., Hurtado, S., Manjón, G., García-Tenorio, R., 2007. Calibration and measurement of ^{210}Pb using two independent techniques. Radiat. Meas. 42, 1552 – 1560. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2007.05.053>.
- Villa, M., Hurtado, S., Manjón, G., García-Tenorio, R., García-León, M., 2006. Direct ^{210}Pb determination in environmental samples by liquid scintillation counting and its validation through γ -ray spectrometry. In: S. Chalupnik, F. Schönhofer, J. Noakes (Eds.), LSC 2005, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, 2006, pp. 217–227.
- Vrecek, P., Benedik, L., Pihlar, B., 2004. Determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in sediment and soil leachates and in biological materials using a Sr-resin column and evaluation of column reuse. Appl. Radiat. Isotopes. 60(5), 717–723. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2003.11.088>.
- Wallner, G., Wagner, R., Katzlberger, C., 2008. Natural radionuclides in Austrian mineral water and their sequential measurement by fast methods. J. Environ. Radioactiv. 99(7), 1090–1094. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.12.021>.
- Wang, Y., Ma, Y., Dai, X., 2019. Direct analysis of ^{210}Pb in drinking water by liquid scintillation counting after sulfate precipitation, J. Environ. Radioactiv. 201, 19–24. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.01.018>.
- Wang, Y., Yang, Y., Song, L., Ma, Y., Luo, M., Dai, X., 2018. Effects of sodium salicylate on the determination of Lead-210/Bismuth-210 by Cerenkov counting. Appl. Radiat. Isotopes. 139, 175–180. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2018.05.013>.
- WHO, 2011. Guidelines for Drinking-water Quality, 4th edition. World Health Organization, WHO Press, Genève, Switzerland, ISBN: 978 92 4 154815 1.

Biografija

Miloš Garabandić, rođen 27.02.1993, u Novom Sadu. Osnovno obrazovanje stekao u školi „Dušan Radović”, završava je 2008 godine i upisuje Srednju medicinsku školu „7. April” u Novom Sadu. Dodatno pohadja seminare astronomije u Istraživačkoj stanici Petnica u periodu od 2 godine. Medicinsku školu zavšava 2012 godine. Iste godine upisuje Prirodno-matematički fakultet na Univerzitetu u Novom Sadu, smer medicinska fizika. Godine 2018 počinje da radi u srednjoj privatnoj gimnaziji „e-gimnazija”, od septembra 2019 počinje sa radom u Osnovnoj školi „Vuk Karadžić” u Srbobranu, i privatnoj računarskoj gimnaziji „Smart”.

**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:

Garabandić Miloš

AU

Mentor:

Prof Nataša Todorović

MN

Naslov rada:

Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje ^{210}Pb 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:

2019

GO

Izdavač: Autorski reprint

IZ

Mesto i adresa: Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

MA

Fizički opis rada: Broj poglavlja: 6

FO Broj strana: 43

Broj tabela: 8

Broj slika: 25

Naučna oblast: Fizika

NO

Naučna disciplina: Nuklearna fizika

ND

Predmetna odrednica/ ključne reči: Radioaktivnost, tečni scintilacioni detektor, Quantulus 1220, olovo, kalibracija, Černekovljevo zračenje

PO

UDK

Čuva se: Biblioteka departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu

ČU

Važna napomena: nema

VN

Izvod: U diplomsko radu opisan je način na koji se može meriti pristupstvo olova 210 u vodi putem Čerenkovljevog zračenja. Za merenje je koristen tečni scintialcioni detector naziva Quantulus 1220, koji je radio u ultra low level režimu, pogodnih za merenje niskih aktivnosti.

Datum prihvatanja teme od NN veća:

DP

Datum odbrane:

DO

Članovi komisije:

KO

Predsednik: prof dr Nataša Todorović *prof dr Nataša Todorović*

član: doc Ivana Stojković *doc Ivana Stojković*

član: prof dr Dušan Mrđa

član: prof dr Maja Stojanović

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: Garabandić Miloš

AU

Mentor/comentor: Prof Nataša Todorović

MN Doc Ivana Stojković

Title:

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: 2019

PY

Publisher: Author's reprint

PU

Publication place: Faculty of Science and Mathematics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

PP

Physical description: 5/182/32/0/71/0/3

PD

Scientific field: Physic

SF

Scientific discipline: Nuclear physic

SD

Subject/ Key words: Cherenkov counting, Radioactivity, Quantulus 1220, liquid scintillation detector, lead

SKW

UC

Holding data: Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4

HD

Note: none

N

Abstract: This final paper describes the measurement of 210PB

AB in water Cerenkov radiation detection by liquid scintillation spectrometer. As for liquid scintillation detector is used *Quantulus 1220*.

Accepted by the Scientific Board:

ASB

Defended on:

DE

Thesis defend board:

DB

President: prof dr Nataša tođorović

Member: doc Ivana Stojković

Member prof dr Dušan Mrđa

Member: prof dr Maja Stojanović