



UNIVERZITET U NOVOM SADU  
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET  
DEPARTMAN ZA FIZIKU



**Određivanje starosti izvora  $^{252}\text{Cf}$  nedestruktivnom metodom  
nuklearne forenzike  
-Master rad-**

Mentor: dr Jovana Nikolov

Student: Mina Vulović

Novi Sad, 28. jul 2020.

## Sadržaj

<i>Uvod</i>	3
<i>1. Pregled nuklearno forenzičke nauke</i>	5
1.1. Nuklearne reakcije	5
1.1.1. Pretnje po nuklearnu bezbednost	8
1.2. Neutron	9
1.3. Interakcija neutrona sa materijom	10
1.3.1. Pojam mikroskopskog efikasnog preseka	10
1.3.2. Relacija između energije-brzine za neutrone	11
1.3.3. Tipovi interakcija	12
<i>2. Gama spektrometrija kao nedestruktivna metoda nuklearne forenzike</i>	17
2.1. Detekcija jonizujućeg zračenja	17
2.1.1. Dozimetrijske veličine i jedinice	21
2.2. Metoda gama-spektrometrije	24
2.3. Germanijumski detektori	25
<i>3. Kalifornijum</i>	27
3.1. Proizvodnja kalifornijuma	27
3.1.1. Radiohemski procesuiranje kalifornijuma	29
3.2. Kalifornijum osobine i izotopi	31
3.3. Fisija	34
3.4. Šema raspada i spektar zračenja	38
<i>4. Rezultati merenja</i>	40
<i>5. Zaključak</i>	48
<i>Literatura</i>	49
<i>Biografija</i>	51
<i>KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA</i>	52

## Uvod

Kalifornijum ( $^{252}\text{Cf}$ ) je posebno značajan radioizotop, jer se koristi kao izvor neutra. Međutim, on ne emituje samo neutrone, već je prisutno i gama zračenje. Kako neutroni prilikom interakcije sa materijom imaju veću biološku efikasnost, doprinos ukupnoj dozi kalifornijumovog izvora od strane gama zračenja se zanemaruje. Šema raspada  $^{252}\text{Cf}$  je dobro poznata. To znači da je specifična gama konstanta izvora poznata za sveže proizveden kalifornijumov izvor.

$^{252}\text{Cf}$  se koristi kao neutronski izvor usled činjenice da doživljava spontanu fisiju. Znatan broj njegovih fisionih produkata su gama emiteri, koji doprinose ukupnoj dozi. Međutim, zbog činjenice da je kod svežeg izvora neutronska doza veća od doze gama zračenja, o uticaju nagomilavanja fisionih produkata vremenom u zapečaćenom izvoru, te njihovom doprinosu ukupnoj gama dozi se ne vodi računa [1].

Kalifornijumovi izvori neutra koriste se u različite svrhe, u industriji, medicini, i geologiji. U svetu su se često takvi izvori mogli naći izvan regulatorne kontrole. U tim situacijama, nuklearno-forenzička analiza može pomoći kriminalističkoj istrazi da utvrdi, razjasni ili proceni činjenice ili okolnosti koje su važne za pronalaženje istine u slučajevima koji se tiču nezakonitih aktivnosti sa nuklearnim ili drugim radioaktivnim materijalima.

Gama spektrometrija visoke rezolucije korišćena je za proučavanje karakteristika izvora kalifornijuma koji se nalazi u laboratoriji za nuklearnu fiziku, PMF Novi Sad. U radu je primenjen gama spektrometrijski metod opisan detaljno u radu [2]. Ove karakteristike su relevantne tokom kriminalističke istrage vezane za kalifornijumove izvore koji su pronađeni van regulatorne kontrole.

Određivanje starosti izvora oslanja se na merenju odnosa aktivnosti dugoživećih i kratkoživećih proizvoda fisije nastalih od  $^{250}\text{Cf}$  i  $^{252}\text{Cf}$ . Ovaj pristup zasnovan je na poznatoj metodi, ali takođe uvodi nove parove izotopa koji se mogu koristiti u tu svrhu. Izotopski sastav je procenjen iz direktnog merenja aktivnosti  $^{249}\text{Cf}$  i  $^{251}\text{Cf}$  izotopa. Pokazano je da se gama spektrometrija može uspešno koristiti za karakterizaciju izvora kalifornijuma i procenu njegove starosti što bi imalo dalju primenu u nuklearnoj forenzici.

Cilj ovog rada je testiranje nedestruktivne metode za procenu starosti radioaktivnog izvora, u ovom slučaju izvora  $^{252}\text{Cf}$ .

## **1.Pregled nuklearno forenzičke nauke**

Ovo poglavlje ima za cilj da nas upozna sa nuklearnom forenzikom kao naukom. Sve veće mogućnosti korišćenja nuklearne energije dovele su do povećanja količine opasnih fizijskih i radioaktivnih materijala, nuklearnih postrojenja, nuklearne opreme, kao i broja zemalja koje ih poseduju. Kao rezultat toga, povećan je rizik neovlašćenog posedovanja i nedozvoljne upotrebe nuklearnih materijala i/ili radioaktivnih izvora (koji se nazivaju i radioaktivnim materijalom).

Nuklearna fizika je kao naučna oblast začeta 1896. godine, Bekerelovim otkrićem zračenja uranijuma i njena oblast istraživanja je atomsko jezgro. Danas ne postoji nijedna grana industrije koja ne koristi rezultate nuklearne fizike, a dobro je poznata i njena primena u industriji oružja. Posle Bekerelovog istorijskog otkrića, Pjer i Marija Kiri su otkrili da postoje i drugi elementi, koji zrače, takozvani prirodni radioaktivni elementi – torijum, polonijum, radijum. Izvodeći eksperimente sa apsorpcijom zračenja u materijalu, Kiri i Radeford su pokazali da zračenje iz radioaktivnih elemenata sadrži komponente raznih moći prodiranja. Najmanje prodorni zraci, koji su apsorbovani već u nekoliko centimetara vazduha ili u metalnoj foliji debljine oko 0.1 mm nazvani su  $\alpha$  - zraci.

Prodornija komponenta zračenja, koja je apsorbovana sa oko 1mm olova, nazvana je  $\beta$  - zraci. Metodama skretanja u magnetnom polju pokazano je da su  $\alpha$  i  $\beta$  zraci čestične prirode, pri čemu je ustanovljeno da  $\alpha$  - čestice predstavljaju jezgra helijuma, a  $\beta$  - čestice elektrone koji se kreću brzinama veoma bliskim brzini svetlosti. Godine 1900. Vilard je otkrio treću, još prodorniju vrstu jonizujućeg zračenja, koja je mogla da prođe i kroz 10 cm olova. To zračenje nije bilo moguće skrenuti magnetnim poljem, na osnovu čega je zaključeno da je elektromagnetne prirode. Ono je nazvano  $\gamma$  – zračenje [3].

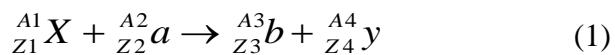
Daljim napretkom nuklearne fizike došlo se do više saznanja o nuklearnom zračenju, odnosno o njegovoj prirodi. Tako da se danas zna:  $\alpha$  - čestica sadrži dva protona i dva neutrona i predstavlja najstabilniji sistem nukleona u prirodi. Pošto jaka nuklearna sila ima osobinu zasićenja, može se pretpostaviti da su konfiguracije tipa  $\alpha$  – čestice, prisutne u jezgru (kao i molekuli  $H_2$  u vodoniku). Kod masivnih jezgara, koja sadrže veliki broj protona i neutrona, jaka nuklearna sila, koja drži na okupu protone u jezgru, može se uporediti sa elektrostatičkim silama, koje deluju odbojno, s obzirom da protoni poseduju istoznačno nanelektrisanje.

Kod radioaktivnih jezgara, potrebna je mala energija da bi se iz njih oslobodile  $\alpha$  - čestice, dok se neke od njih oslobađaju prolaskom kroz energetsku barijeru jakih sila.  $\beta$  - čestica je elektron, koji poseduje visoku energiju. Postoje elementi kod kojih su nukleoni slabo

povezani, tako da je slaba nuklearna sila uporediva sa jakom. To dovodi do raspada neutrona, iako su prisutni protoni. Prilikom raspada neutrona oslobađa se visokoenergetski elektron, koji se naziva  $\beta$  - čestica.  $\gamma$  - čestica je visokoenergetski foton, i naziva se  $\gamma$  - zrakom.  $\gamma$  - zraci su nuklearni ekvivalent X - zraka na atomskom nivou. Prilikom promene energetskog nivoa protona ili neutrona, u okviru jezgra, emituje se ili apsorbuje foton. Kako je sila između protona i neutrona u jezgru mnogo jača od sile između protona i elektrona, odgovarajući energetski nivoi su znatno udaljeniji, tako da fotoni koji se ovom prilikom emituju, imaju veoma velike energije. Zato važi da su  $\gamma$  - emiteri pobuđena jezgra, koja nastaju kao produkt  $\alpha$  - ili  $\beta$  - raspada.

### 1.1. Nuklearne reakcije [4]

Pod nuklearnom reakcijom se podrazumeva proces pri kojem atomsko jezgro nekog elementa interaguje sa drugim (obično lakisim) jezgrima, slobodnim neutronima ili fotonima dovoljne energije, i u toku perioda vremena dugog  $10^{-12}$  s ili kraće se transformišu u drugo jezgro (ili više jezgara) emitujući pri tome čestice ili elektromagnetsko zračenje. Ako pri bombardovanju jezgra česticama ne dolazi ni do promene jezgra, ni do promene čestice, niti do stvaranja drugih jezgara ili emisije čestica, takav proces se zove rasejanje. Rasejanja se u užem smislu ne smatraju nuklearnim reakcijama, ali se obično izučavaju u okviru njih, i šire posmatrano spadaju u nuklearne interakcije. Nuklearne reakcije se u opštem vidu predstavljaju jednačinama koje su analogne onima koje se koriste za hemijske reakcije:



X - jezgro mete, Y - jezgro proizvoda, a - laka čestica projektil i b - čestica koja se tom prilikom emituje. Oznake rednih brojeva, Z, se obično izostavljaju, osim kad je potrebno istaći održanje nuklearnog nanelektrisanja, jer su one praktično sadržane u hemijskom simbolu elementa. Kod čestica a i b se često izostavljaju i oznake za maseni broj A, ako se koristi oznaka za česticu, npr. p za proton, n za neutron itd. U stvari, najčešće se čitava nuklearna reakcija označava po skraćenoj notaciji koju je predložio Bete, i koja se po njemu zove Beteova notacija  ${}^{A_1}X(a, b){}^{A_2}Y$ . U njoj su u zagradama date skraćene oznake lake čestice projektila i čestica koja se tom prilikom emituje, razdvojene zarezom, a sa strana jezgro mete odnosno jezgro proizvoda, sa svojim hemijskim znacima i masenim brojevima.

Prvu nuklearnu reakciju izveo je Raderford 1919. godine izlažući u svom eksperimentu jezgra azota dejstvu  $\alpha$ -čestica. Od ostvarenja prve nuklearne reakcije Raderforda iz 1919. godine pa sve do pojave prvih mašina za ubrzavanje nanelektrisanih čestica praktično jedini izvori projektila za bombardovanje jezgara su bili prirodni  $\alpha$ -emiteri. Verovatno da je zbog toga čak 13 godina nakon Raderfordovog otkrića jedina poznata nuklearna reakcija bila ( $\alpha, p$ ) reakcija. Alfa čestice su se koristile za ispitivanje strukture jezgara u eksperimentima rasejanja i kasnije, za dobijanje neutrona pri reakciji sa berilijumom. Pre početka korišćenja prvih akceleratora, igrale su veoma veliku ulogu u nuklearnoj fizici. Jezgro koje nastaje posle raspada ima redni broj za dva manji od polaznog jezgra, pa se pri tom otpuštaju dva elektrona, da bi novi atom bio elektroneutralan. Alfa raspad mogu da dožive atomi kojima je masa veća od zbiru mase alfa čestice i jezgra koje ima redni broj za dva manji od početnog. Ovo je zadovoljeno za većinu težih jezgara od olova. Kako energija veze po nukleonu opada sa porastom masenog broja,  $\alpha$  raspadom nastaje novo, jače spregnuto jezgro, te dolazi do oslobođanja energije.

Reakcija raspada je stoga egzotermna, energija se oslobođa u vidu kinetičke energije alfa čestice i uzmaka jezgra potomka, u odnosu:

$$E_j = \frac{M_\alpha}{M_j} E_\alpha \quad (2)$$

Sa indeksima j označeni su energija uzmaka jezgra potomka i masa jezgra potomka, dok su sa indeksom  $\alpha$  obeležene kinetičke energije alfa čestice i njihova masa.

Veliki broj alfa emitera emituje alfa čestice samo jedne energije. Ovo odgovara slučaju da je jezgro potomak nastalo u osnovnom energetskom stanju. Tada, kompletna energija prelaza se deli na kinetičke energije alfa čestice i jezgra potomka. Međutim, postoji izvestan broj radioizotopa, koji emituju nekoliko grupa alfa čestica. Ovo se naziva fina struktura alfa čestica i odgovara slučaju kada je novonastalo jezgro u nekom od svojih mogućih pobuđenih stanja.

Tek je 1932. godine ostvarena reakcija drugog tipa sa protonom,  ${}^7\text{Li} + p \rightarrow {}^{24}\text{He}$ , kao i fotonuklearna reakcija. Obe su delo Kokrofta i Voltona. Prirodni izvori projektila danas su samo od istorijskog značaja s obzirom na male energije. Sada je pomoću različitih nuklearnih mašina moguće dobiti široke spektre najrazličitijih projektila.

Među datumima koji su značajni za istorijat nuklearnih reakcija treba izdvojiti sledeće: (1) već opisani Raderfordov eksperiment iz 1919. godine, zatim (2) konstrukcija prvog ciklotrona (Lorens) u današnjoj Lorens Berkli laboratoriji (1929-1930), u kojem je dobijen proton energije od oko 80 keV, (3) otkriće pozitrona i kosmičkog zračenja - (koje je otkrio Anderson, 1932. godine), (4) izgradnja prvog akceleratora i ostvarenje već spomenute reakcije ( $p, \alpha$ ) tipa, Kokrofta i Voltona (1932), što je sve zajedno imalo velikog značaja za dalji razvoj,

koji je tekao veoma ubrzano. Godine 1932. (5) otkriven je deutrijum (D) - teški i stabilni izotop vodonika, što je dalo mogućnost stvaranja deuteronskih projektila. Te iste i nuklearnim otkrićima veoma bogate godine, Čedvik je (6) otkrio neutron, sa kojim je tehnika nuklearnih reakcija dobila najmoćnije oruđe. Njegovo otkriće je dovelo do niza novih, među kojima je najvažnije (7) otkriće fisije jezgara iz 1939. godine. Ono nas je uvelo u eru intenzivnog razvoja nuklearnih tehnologija. Treba istaći da se u međuvremenu, 1934. godine desilo (8) otkriće veštačke radioaktivnosti (I. Žolio-Kiri i F. Žolio-Kiri), kroz reakciju ( $\alpha$ , n) tipa. Naime, prvi veštački stvoreni radionuklid je bio izotop fosfora  $^{30}\text{P}$ , a stvoren je bombardovanjem aluminijumske folije visokoenergijskim  $\alpha$  - česticama iz polonijuma.

### **1.1.1. Pretnje po nuklearnu bezbednost**

Brojne primene nuklearne energije su dovele do povećanja količine opasnih i radioaktivnih materijala, nuklearnih instalacija, nuklearne opreme kao i broja zemalja koje ih poseduju. Kao rezultat toga, rizik neautorizovanog posedovanja i ilegalne upotrebe nuklearnih materijala i radioaktivnih izvora u kriminalne ili terorističke svrhe se povećao. Pojedini nuklearni i drugi radioaktivni materijali koji se koriste u mirnodopske svrhe poseduju ogroman destruktivni potencijal, radiološku opasnost i visoku toksičnost. Zbog toga je nužno povećati fizičku zaštitu ovih materijala protiv upotrebe u kriminalne svrhe. Neautorizovano posedovanje i ilegalno trgovanje nuklearnim materijalima može biti deo globalne proliferacije, te samim tim predstavlja rizik ne samo za ljudsko zdravlje i bezbednost populacije, već se takođe može upotrebiti za konstrukciju jednostavnih nuklearno-eksplozivnih uređaja.

Krijumčarenje nuklearnog i/ili radioaktivnog materijala je jedan od glavnih izazova kojima se internacionalna zajednica bavi budući da ilegalna upotreba radioaktivnih materijala predstavlja pretnju za ceo svet. Ovo se najviše odnosi na nuklearne materijale vezane za oružje kao što su obogaćeni uranijum i plutonijum. Ova specifična kategorija materijala je od velikog interesa ne samo zemljama koje pokušavaju da razviju tajni nuklearni program, već i terorističkim organizacijama. Samim tim, pretnja od nuklearnog terorizma je postala glavna tema diskusije internacionalnih zajednica gde se baš specijalna pažnja poklanja pretnjama koje se javljaju usled konstrukcije improvizovanih nuklearnih eksplozivnih uređaja i radioloških disperzionih uređaja.

Na globalnom nivou, sve više i više napora bi trebalo da se uloži za prevenciju, detekciju i adekvatni odgovor svih zemalja na datu nuklearnu pretnju. Prema definiciji IAEA, nuklearna pretnja je: "Osoba ili grupa ljudi sa namerom i sposobnostima za počinjavanje kriminalnog akta

povezanog sa nuklearnim i drugim radioaktivnim materijalima. Takođe, bilo koji pripadajući objekat ili povezane aktivnosti za koje država smatra da imaju negativni uticaj na nuklearnu bezbednost se smatraju pretnjama”.

Inernacionalne zajednice su oformile brojna partnerstva čime bi pojačale saradnju i razmenu informacija i razmenu u datim situacijama među partnerskim zemljama. Primeri takvih partnerstava su ITWG (The Nuclear Forensic International Technical Working Group), GICNT (The Global Initiative to Combat Nuclear Terrorism) i PSI (The Proliferation Security Initiative).

## 1.2. Neutron

Neutron je po mnogo čemu jedinstvena čestica - bez nanelektrisanja, ima relativno veliku masu, podleže radioaktivnom raspadu. Neutroni izgrađuju svako atomsko jezgro izuzev lakog vodonika, tj. konstituent su svake materije. U nuklearnim reakcijama neuporedivo je važniji od bilo koje druge čestice, a posebno kod fisije jezgara. Ona je otkrivena uz korišćenje neutrona kao bombardujućeg projektila, ali još je važnije od toga da fisioni uređaji, kao što su nuklearni fisioni reaktori ili fisione bombe, zasnivaju svoj rad na postojanju i stalnom obnavljanju neutrona u sistemu. Na fisiji se temelji većina nuklearnih tehnologija. Zato nije čudno što je ta čestica detaljno i svestrano ispitivana, pa joj se posvećuje posebna pažnja, najviše zbog toga da bi to poslužilo kao uvod u fisiju. Neutron je otkriven tek 1932. godine, a to otkriće je ubrzalo istraživanja nuklearnih reakcija i nakon nekoliko godina dovelo do otkrića fisije. Kratak istorijat otkrića 1920. - Raderford je postulirao postojanje „atoma mase 1 sa nultim nanelektrisanjem”. U toku narednih 12 godina bilo je mnogo bezuspešnih pokušaja da se to dokaže. 1930. - Bete i Beker su bombardovali berilijum, litijum i druge lave elemente sa  $\alpha$ -zracima emitovanim iz polonijuma i našli da se, pored jednog izotopa ugljenika dobija i neko veoma prodorno zračenje koje su interpretirali kao  $\gamma$ . Naime, postulirana je reakcija:



1932. - Frederik i Irena Žolio-Kiri nalaze da zračenje dobijeno u gornjoj reakciji ne jonizuje sredinu, ali da izbacuje protone iz materijala koji sadrži vodonik (H), npr. parafinu, koji imaju domet u vazduhu od oko 26 cm. 1932. Čedvik je zapazio da zračenje iz gornje reakcije, kao i iz reakcije jezgara bora bombardovanih  $\alpha$ -česticama  $^{10}\text{B} + ^4\text{He} \rightarrow ^{14}\text{C}$  + prodorno zračenje, pored toga što je veoma prodorno, može da izbije ne samo jezgra vodonika, već i jezgra lakih elemenata, kao što su Li, Be, B, C i N, iz materijala koji ih sadrže. On je zaključio

da se radi o težoj čestici koja nema nanelektrisanje, a ne o fotonu, kako je to ranije interpretirano. Iz poznatih masa i izmerenih energija reaktanata i produkata, Čedvik je uspeo da proceni masu neutrona - neznatno je manja od zbira masa protona i elektrona, dakle mase vodonikovog atoma. Danas znamo da je ona neznatno veća, za oko 0.08 %.

Otkriće neutrona bilo je od posebnog značaja, jer se ubrzo pokazalo da je on, zbog odsustva potencijalne barijere, sposoban da lako prodre u jezgro drugog elementa i od njega stvori izotop s jednom masenom jedinicom više. Zbog viška neutrona koje poseduje, novonastalo jezgro, po pravilu, pokazuje  $\beta$  - radioaktivnost, čime se i njegov redni broj uvećava za jedan. Neposredno po otkriću slobodnih neutrona 1932. godine, nuklearni fizičari su ih počeli koristiti da bi od jednog jezgra bombardovanjem napravili drugo. Fermi, koji je predvodio tzv. Italijansku grupu, a u kojoj su osim njega radila još četiri mlađa saradnika, je izvodio reakcije sa jezgrima šezdesetak hemijskih elemenata i potvrdio gornje pretpostavke, tj. da se od jednog elementa može dobiti drugi koji je za jednu jedinicu teži. Na primer za taj rad Fermi je 1938. godine dobio Nobelovu nagradu. Godine 1934. on je došao i do elementa uranijuma (redni broj 92, tada najteži poznati element). Uranijum je bio najveći izazov jer se očekivalo da će apsorpcijom neutrona i pratećim  $\beta$  - raspadom dati još teže, do tada nepoznate elemente, tzv. transuranijumske elemente, po shemi  $X$  - jezgro prvog transuranijumskog elementa. Prepostavljen je da bi jezgro  $^{239}_{93}X$  moralo takođe biti  $\beta$  - radioaktivno i dati sledeći transuranijum (Y) rednog broja 94. Italijanska grupa uskoro objavljuje da su uranijum bombardovali neutronima i dobili pored početne, normalne  $\alpha$  - radioaktivnosti uranijuma, niz od pet  $\beta$  - radioaktivnosti, među njima i jednu s vremenom poluraspada od 13 minuta. Nju su pripisali elementu sa rednim brojem 93, za koga su smatrali da bi hemijski trebalo da bude sličan renijumu (Re), polazeći od toga da on u Periodnom sistemu tadašnjeg doba, taloženjem tog „eka-renijuma” zajedno sa renijum-sulfidom kao nosačem 43, koji je nerastvoran u HCl, je povuklo ovu aktivnost, ali i nekoliko drugih elemenata, tako da to nije mogao biti sasvim pouzdan dokaz. Berlinska grupa, koju je vodio Oto Han, a u kojoj su još sudelovali L. Majtner i F. Štrasman, je ponovila eksperiment i smatrala je da je potvrđila Fermijeve rezultate. Oni su našli čak devet različitih radioaktivnosti, što je još više zamaglilo sliku. Štaviše, po njihovoj interpretaciji oni su „našli”  $^{93}\text{eka-Re}^{237}$  (vreme poluraspada 16 min),  $^{93}\text{eka-Re}^{239}$  ( $t_{1/2} = 2,2$  min),  $^{94}\text{eka-Os}^{237}$  ( $t_{1/2} = 12$  časova),  $^{94}\text{eka-Os}^{239}$  ( $t_{1/2} = 59$  min),  $^{95}\text{eka-Ir}^{239}$  ( $t_{1/2} = 3$  dana) i  $^{96}\text{eka-Pt}^{239}$  ( $t_{1/2} = 12$  časova), mada sličnost eka-elemenata sa odgovarajućim poznatim elemetima nije dokazana. Sve to je još više doprinelo opštoj konfuziji.

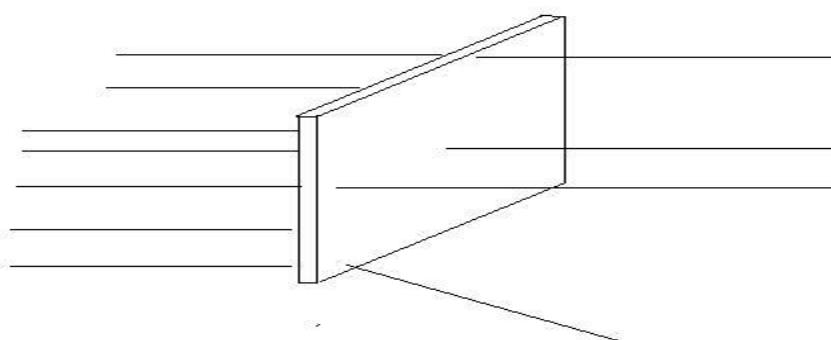
Pariska grupa, koja je radila u Institutu za radijum u Parizu, a kojoj su bili I. Žolio-Kiri i njen asistent Pavle Savić, beogradski fiziko-hemičar, je posle dve godine istraživanja našla, pored devet već poznatih, i deseti radioaktivni element sa vremenom poluraspada od 3.5 časova (označenu kao  $R_{3,5h}$ ). Zbog prodornijeg zračenja koje ovaj nuklid emituje, uz primenu pogodnih filtera, moglo se pratiti njegovo ponašanje bez smetnji od ostalih radioaktivnih elemenata. Tako je krajem 1938. godine nađeno da on, hemijski odgovara elementu lantanu, koji je 36 rednih brojeva ispod uranijuma, što je izgledalo gotovo nemoguće, jer su se očekivali elementi teži od uranijuma, sa sasvim drugaćijim svojstvima [5].

### 1.3. Interakcija neutrona sa materijom

Neutroni su neutralne čestice, sa periodom poluraspada od 10 minuta. Pored toga imaju i niski magnetni moment, tako da ih nije moguće detektovati direktno, nego samo posredno i uz korišćenje složenijih metoda. Postoji veliki broj tehnika i metoda za detekciju neutrona.

#### 1.3.1. Pojam mikroskopskog efikasnog preseka

Da bi se pravilno razumela interakcija neutrona sa materijom (atomskim jezgrima) potrebno je uvesti pojam mikroskopskog efikasnog preseka, koji predstavlja verovatnoću interakcije neutrona sa jezgrom. Posmatrajmo neurone koji padaju na tanku pločicu, neki od ovih neutrona napustiće pločicu bez interakcije, neki će interagovati na taj način što će izgubiti deo svoje energije i promeniti pravac i nastaviti kretanje, a interakcija nekih neutrona sa atomskim jezgrima doveće će do toga da ti neutroni ne napuste pločicu, Slika 1.1.



Slika 1.1. Šematski prikaz interakcije neutrona sa tankom pločicom [5].

Svaki od ovih procesa ima svoju verovatnoću dešavanja. Na primer, verovatnoća da neutron ne napusti pločicu data je relacijom:

$$\sigma = \frac{\Delta N}{N} \frac{1}{nx} \quad (4)$$

Gde je sa  $\Delta N$  - broj neutra koji je interagovao preko procesa apsorbcije ili zahvata neutra,  $N$  - ukupan broj neutra koji padaju na pločicu,  $n$  - broj atoma (jezgara) po jedinici zapremine,  $x$  - debljina pločice. Efikasni presek ima dimenzije površine. Pošto ovaj tip efikasnog preseka opisuje samo verovatnoću interakcije neutra sa jednim atomskim jezgrom, naziva se mikroskopski efikasan presek i obeležava se sa  $\sigma$ .

Fizičke dimenzije površine atomskih jezgara su oko  $10^{-24}$  cm $^2$ . Efikasan presek za interakcije za većinu atomskih jezgara je tipično između  $10^{-27}$  i  $10^{-21}$  cm $^2$ . Da bi se izbeglo operisanje sa ovako malim vrednostima uvedena je nova jedinica barn, koja se obeležava simbolom  $b$ . Vrednost 1b iznosi  $10^{-24}$  cm $^2$ . Kod većine neutronske interakcije vrednost efikasnog preseka iznosi od 0.001 do 1000 barn.

Svaki od tipova događaja ima svoju verovatnoću dešavanja i vrednost efikasnog preseka. Verovatnoća za dešavanje nekog tipa događaja je nezavisna od verovatnoće drugih tako da je totalna verovatnoća bilo kog događaja jednaka sumi pojedinačnih verovatnoća. Analogno tome i suma svih individualnih efikasnih preseka jednaka je totalnom efikasnom preseku [5].

### 1.3.2. Relacija između energije-brzine za neutrone

Vrednost efikasnog preseka se nalazi u vrlo velikoj zavisnosti od energije. U ovom odeljku težište je na relaciji koja daje vezu između energije-brzine neutra. Ova veza je jako važna ne samo sa stanovišta razumevanja efikasnog preseka nego i određivanja vremena koje neutron provede u nekoj materijalnoj sredini, u našem slučaju zapremini detektora.

Klasičan izraz za kinetičku energiju dat je relacijom  $E_k = \frac{mv^2}{2}$ , u našem slučaju daje sasvim zadovoljavajuću vrednost, zbog toga što vrednost kinetičke energije neutra od 100 MeV u poređenju sa vrednošću energije mirovanja neutra (939 MeV) je za red veličine

manja, te se zbog toga može koristiti klasičan izraz za kinetičku energiju. Za brzinu  $v$  koja je data u metrima u sekundi i kinetičku energiju  $E$  u [MeV], veza je data relacijom:

$$E = 5.227 \cdot 10^{-15} v^2 \quad (5)$$

pri čemu vrednost brzine upadnog neutrona iznosi  $v=1.383 \cdot 10^7$  m/s.

Na primer neutron kinetičke energije 1 MeV ima brzinu od  $1.383 \cdot 10^7$  m/s što znači da će neutron kroz uzorak debljine 15 cm proći za nekih 11 ns. Neutroni sa energijom od 0.025 eV imaju brzinu 2187 m/s što znači da će neutron kroz uzorak debljine 15 cm proći za nekih 70  $\mu$ s .

*Tabela 1.1. Tipovi neutrona u zavisnosti od vrednosti kinetičke energije.*

Tip neutrona	Energija
Hladni	< 1 meV
Termalni	< 0.5 eV
Epitermalni	0.5 eV – 50 keV
Brzi	> 50 keV
Srednje brzi	> 1 MeV
Ultra brzi	> 10 MeV

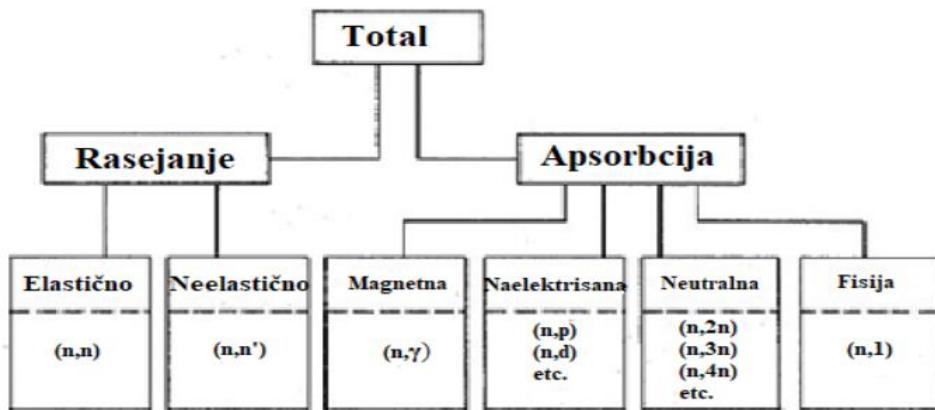
### 1.3.3. Tipovi interakcija [6]

Postoji veliki broj interakcija neutrona sa atomskim jezgrom. Na slici 1.2. prikazani su tipovi interakcije i njihovi efikasni preseci.

Jednostavnom notacijom može se predstaviti rezultat interakcije. Ako neutron  $n$  bude apsorbovan ili zahvaćen od strane atomskog jezgra  $T$ , dolazi do formiranja atomskog jezgra  $R$  i emitovanja neke čestice  $g$ , takva interakcija se može predstaviti na sledeći način  $T(n,g)R$ . Atomska jezgra se uvek prikazuju sa strana zagrade, tj ispred i iza zgrade.

Interakcije se mogu podeliti u dva tipa: reakcije rasejanja i reakcije apsorpcije. Kada se neutron rasejava na atomskom jezgru, brzina i pravac se menjaju ali atomska jezgro posle interakcije zadržava isti broj protona i neutrona, kao što je imalo pre interakcije.

Atomsko jezgro posle interakcije dobija energiju uzmaka i postoji verovatnoća da atomsko jezgro ostane u nekom od pobuđenih stanja, iz kojeg prelazi u osnovno uz emisiju zračenja. Kada je neutron apsorbovan od strane atomskog jezgra, postoji više vrsta zračenja koje se emituje pri prelazu iz pobuđenog stanja jezgra u krajnje stanje jezgra.



*Slika 1.2. Različiti tipovi reakcija koje nastaju u interakciji jezgra i neutrona.*

Rasejanje se može podeliti u dva tipa: elastično i neelastično. Pri elastičnom rasejanju, totalna kinetička energija neutrona i atomskog jezgra ostaje nepromenjena u interakciji. Tokom interakcije, deo kinetičke energije neutrona prelazi na jezgro. Za neutron kinetičke energije  $E$  koji interaguje sa atomskim jezegrima masenog broja  $A$ , srednji gubitak energije po jednom sudaru dat je relacijom:

$$\Delta E = \frac{2EA}{(A+1)^2} \quad (6)$$

Koristeći ovu relaciju može se pratiti gubitak energije po putu i naći koliki je najmanji broj elastičnih sudara potreban, da bi energiju sa neke vrednosti doveli na neku drugu. Na primer, ako se posmatraju atomska jezgra vodonika ( $A=1$ ), srednji energetski gubitak ima vrednost od  $E/2$ . Ako se posmatra neutron početne kinetičke energije  $E = 2 \text{ MeV}$ , posle prvog sudara sa atomskim jezgrom njegova energija biće  $E = 1 \text{ MeV}$ , nakon drugog  $E = 0.5 \text{ MeV}$  i itd. Da bi se izvršila termalizacija brzog neutrona, pojam brzi neutron u ovom radu se odnosi na sve neutrone čija energija je veća od termalne, kinetičke energije  $E = 2 \text{ MeV}$  potrebno je 27 elastičnih sudara. Neutron kinetičke energije  $E = 0.025 \text{ eV}$  naziva se termalnim pošto se nalazi u termodinamičkoj ravnoteži sa okolnom sredinom.

$$E = kT \quad (7)$$

Gde je  $k$  - Boltzmanova konstanta a  $T$  - temperatura izražena u kelvinima. Može se izračunati da energija od  $E = 0.025 \text{ eV}$  odgovara sobnoj temperaturi  $T = 293 \text{ K}$ , relacija (6). Uopšteno nakon  $n$  elastičnih sudara, energija neutrona se menja od početne vrednosti  $E_0$  do vrednosti  $E_n$  koja je data relacijom:

$$E_n = E_0 \left[ \frac{A^2 + 1}{(A+1)^2} \right] \quad (8)$$

Ako želimo da znamo koliko elastičnih sudara je potrebno da bi vrednost energije neutrona sa  $E_0$  doveli na  $E_n$  koristimo sledeću relaciju:

$$\eta = \frac{\log \left[ \frac{E_n}{E_0} \right]}{\log \left[ \frac{A^2 + 1}{(A+1)^2} \right]} \quad (9)$$

U Tabeli 1.2. dat je broj elastičnih sudara koji su potrebni da se dese, da se neutron kinetičke energije  $E = 2 \text{ MeV}$  termalizuje u nekoj materijalnoj sredini.

*Tabela 1.2. Srednji broj elastičnih sudara koji se dogode, da bi se energija neutrona sa 2 MeV spustila na 0.025 eV.*

Element	Atomska masa	Broj elastičnih sudara
Vodonik	1	27
Deutrijum	2	31
Helijum	4	48
Berilijum	9	92
Ugljenik	12	119
Uranijum	238	2175

Proces neelastičnog rasejanja teče kao i proces elastičnog rasejanja, s tom razlikom, što kod procesa neelastičnog rasejanja dolazi do promene unutrašnjeg stanja jezgra, što se vidi u promeni unutrašnje energije ili u promeni odnosa njegovih sastavnih delova. Totalna kinetička energija rasejanog neutrona plus energija jezgra je manja od totalne kinetičke energije upadnog neutrona. Energija koja odgovara razlici između energije pre i posle interakcije troši se na ekscitaciju jezgra. U ovom slučaju više nije lako naći relaciju kao kod elastičnog sudara, koja bi nam dala koliki su srednji gubici energije po sudaru pošto se mora u obzir uzeti i mogućnost da dođe do prelaza atomskog jezgra iz nižeg stanja u više pobuđeno stanje. Ali kao i kod elastičnog i usled neelastičnog sudara neutrona sa atomskim jezgrom dolazi do gubitka energije i promene pravca. Ako se sva pobuđena stanja atomskog jezgra nalaze na energijama većim od upadne energije neutrona, onda ne dolazi do neelastičnog rasejanja. Atomska jezgro vodonika nema pobuđena stanja, te interakcija rasejanja neutrona sa vodonikom se može odvijati samo posredstvom elastičnog rasejanja.

Umesto da bude rasejan, neutron može biti i apsorbovan ili ući u proces zahvata. Više varijanti emisije mogu nastati, slika 1.2. U atomskom jezgru može doći do promene unutrašnje strukture i do emisije jednog ili više gama fotona. Naelektrisane čestice isto mogu biti emitovane usled reorganizacije unutrašnje strukture jezgra. Najčešće emitovane čestice su protoni, jezgro deuterijuma i alfa čestice. Pored toga može doći i do emisije neutrona, koji

je različit od upadnog, što je posledica reorganizacije unutar atomskog jezgra. Ako se više od jednog neutrona emituje, to dovodi do toga da je broj upadnih neutrona manji od izlazećih neutrona i takav proces nazivamo multiplikacija neutrona. Proces multiplikacije je veoma značajan u nuklearnoj energetici, naročito kod lančanih reakcija.

## **2. Gama spektrometrija kao nedestruktivna metoda nuklearne forenzike**

### **2.1. Detekcija jonizujućeg zračenja**

Da bi se otkrila i utvrdila osnovna svojstva radioaktivnog zračenja potrebni su posebni uređaji – detektori. Pošto je radioaktivno zračenje otkriveno pomoću fotografске ploče, fotografска ploča se može smatrati prvim detektorom ovog zračenja. Metoda fotografске ploče je usavršena, tako da se došlo do primene nuklearnih emulzija, koje su poslužile za detektovanje nuklearnog i kosmičkog zračenja, kao i za proučavanje nuklearnih reakcija. Radna sredina u detektorima može da bude bilo koje telo koje pod uticajem radioaktivnog zračenja primetno menja svoja svojstva. Pri prolasku radioaktivnog zračenja kroz radnu supstancu, dolazi do različitih promena na čijim se efektima zasniva rad detektora. Različiti detektori mogu da posluže za merenje različitih karakteristika zračenja.

Glavna merljiva karakteristika svih zračenja je energija čestica koje ga čine. Pošto se iz svakog procesa emituju zračenja tačno određenih i njemu svojstvenih energija, to se osobine procesa mogu upoznavati, i procesi identifikovati, prvenstveno merenjem energija iz njihovih emitovanih zračenja. Niži nivo informacija dobija se prostim brojanjem čestica zračenja, odnosno merenjem njegovog ukupnog intenziteta.

Mnoštvo postojećih detektora zračenja moguće je klasifikovati na razne načine. Prema tome koji fizički proces je u osnovi njihovog rada, detektori se mogu podeliti u tri grupe [7]:

- detektori koji rade na principu jonizujućeg zračenja;
- scintilacioni brojači;
- nuklearne emulzije.

Može da se izvrši i uslovna podela na vizuelne i električne. Kada čestice visokih energija napuste izvor, one se kreću kroz materiju i u njoj izazivaju različite efekte. Na osnovu proučavanja interakcije zračenja sa materijom dolazi se do zapažanja koja su značajna prilikom:

- detekcije čestica zračenja i opisivanja njihovih osobina;
- primene ovih pojava;
- zaštite od ovih zračenja.

Uzajamno delovanje zračenja i materije kroz koju ono prolazi zavisi od vrste zračenja (alfa, beta, gama, neutroni, itd.) i od energije svakog od tih zračenja. Pošto su sve to visokoenergetska zračenja, ona spadaju u grupu jonizujućih zračenja.

Na vrlo visokim energijama (male talasne dužine) interakcije se svode na direktne interakcije između elementarnih čestica.

Gama zračenje, odnosno fotonii visokih energija, interaguju sa materijom potpuno drugačije od nanelektrisanih čestica. U zavisnosti od energije fotona i rednog broja sredine dominira jedan od sledeća tri procesa:

- fotoefekat (jonizacija);
- Komptonov efekat;
- proizvodnja parova.

U materijalima visokog rednog broja i na niskim energijama fotona dominira fotoefekat, proces u kome foton svu svoju energiju preda jednom od atomskih elektrona koji tada napušta svoj atom.

Na višim energijama glavni proces u kome fotonii učestvuju je Komptonov efekat, proces rasejanja fotona na slobodnom ili slabo vezanom elektronu. Tada foton skreće sa upadnog pravca pod nekim uglom, a elektron na kome se rasejao pod nekim drugim, pritom foton sa energijom smanjenom za onaj iznos koji je primio elektron. Na još višim energijama fotona od preko 10 MeV, počinje da dominira proizvodnja parova. U ovom procesu foton koji se nađe u jakom polju nekog jezgra može da nestane, a da mesto njegovog nestanka napusti realni par elektron-pozitron. U svim procesima fotonii visokih energija svoju energiju predaju elektronima. Ovi elektroni dalje ionizuju i ekscitiraju atoma sredine, pa za gama zračenje može da se kaže da je indirektno ionizujuće zračenje.

Intenzitet snopa gama zračenja opada sa prolaskom kroz različite debljine materijala. Pri prolasku kroz neku sredinu, intenzitet snopa  $\gamma$ -zračenja eksponencijalno opada sa debljinom materijala:

- intenzitet zračenja na ulazu u sredinu,
- intenzitet zračenja po prelasku rastojanja d,
- linearni koeficijent apsorpcije,
- debljina sloja kroz koji prolazi zračenje.

Debljina sloja olova od 10 cm smanji intenzitet ovakvog gama zračenja oko 1000 puta. Gama zračenja niže energije su znatno manje prodorna.

U elastičnim sudarima sa jezgrima neutroni se prvo uspore pa onda, difundujući kroz materijal, a pre nego što se raspadnu, najverovatnije budu zahvaćeni od strane nekog jezgra. Za razliku od ostalih čestica zračenja emitovanih iz radioaktivnih raspada, koje zanemarljivo interaguju sa jezgrima atoma sredine, neutroni mogu u značajnoj meri da aktiviraju sredinu, odnosno da u njoj proizvode odgovarajuće radioaktivne izotope.

Po prolasku alfa, beta i gama zračenja sredina uz eventualne hemijske promene ostaje neaktivna, dok po prolasku neutrona dodatno postaje i radioaktivna.

Gama-zraci su elektromagnetna zračenja veoma kratkih talasnih dužina (0.005-0.4 Å), koja bivaju izračena u momentu prelaza jezgra sa energetski višeg nivoa na energetski niži nivo. Iz tog razloga gama-zračenje pruža podatke o energetskim nivoima u jezgru, kao što optički spektri H-zračenja govore o elektronskim nivoima u atomskom omotaču. Brzina kretanja ovih zraka odgovara brzini svetlosti. Gama-zraci na svom putu kroz vazduh proizvode relativno slabu jonizaciju, ali su najprodorniji i prolaze manje-više kroz sve materijale. Njihov domet zavisi od energije [7].

Gama-raspad je za razliku od alfa, beta-raspada malo specifičniji. Ovde ne dolazi do pravog raspada jezgra na drugo jezgro, već je gama raspad neka vrste emisije gama zraka. Pri tome jezgro prelazi iz pobuđenog stanja u konačno stanje sa emisijom gama-čestica, koje zovemo fotoni.

Jezgro potomak ( nastalo raspadom jezgra roditelja) ne nalazi se u osnovnom stanju, nego u pobuđenom. Prilikom prelaska jezgra iz pobuđenog u osnovno stanje emituje se gama-foton, slično kao kod atoma prilikom njegovog prelaska iz pobuđenog u osnovno stanje, kada se emituje foton rendgenskog zračenja.

Pri prolazu kroz materiju gama-zraci gube energiju - apsorbuju se na više načina, od kojih su najvažniji: Fotoelektrični i Komptov efekat i stvaranje parova pozitron-elektron.

Fotoelektrični efekat dolazi do izražaja u slučaju dejstva gama-zraka niskih energija na atome sa većom atomskom težinom, pri čemu dolazi do izbijanja elektrona iz pogođenih atoma. Kinetička energija oslobođenih elektrona ( $A=E-R$ ) jednaka je razlici energija upadnog gama zraka (E) i energije vezivanja elektrona u atom (R). Komptonov efekat igra vidniju ulogu u slučaju dejstva gama-zraka viših energija na apsorbere sa manjom atomskom težinom. Pri sudaru

sa slobodnim ili labilno vezanim elektronima gama-zraci predaju deo svoje energije, a sami nastavljaju da se kreću sa promenjenim pravcem i brzinom. Gama zraci visokih energija (preko 1.02 MeV) pri sudaru sa materijalima velike atomske težine gube celokupnu energiju i stvaranjem parova pozitron-elektron prestaju da postoje. Izloženi jakom magnetnom polju gama-zraci ne skreću, pošto nisu nanelektrisani. Oni najčešće prate alfa i beta emisiju. Mogu proći i olovnu ploču debljine 20 cm. Njihova putanja u vazduhu može da iznosi i po nekoliko metara i oni su znatno prodorniji i opasniji nego alfa i beta čestice.

Gama zraci su prodorna zračenja koja su po svojim osobinama veoma slična rendgenskim zracima, samo što su često još prodornija od njih. Kao i rendgenski zraci i gama zraci ionizuju vazduh, deluju na fotografsku ploču, pri prolazu kroz kristale nastaje difrakcija itd. Apsorpcija raste sa porastom atomskog broja elemenata. Međutim, prodorna moć rendgenskog zračenja raste s povećanjem napona na rendgenskoj cevi. Pri kočenju elektrona ubrzanih naponom od nekoliko miliona volti dobija se zakočno rendgensko zračenje, koje se ni po čemu ne razlikuje od gama-zračenja. Dakle, poređenje svojstava rendgenskog i gama-zračenja pokazuje da su ove dve vrste zračenja potpuno iste prirode. Prema tome, gama zračenja predstavljaju elektromagnetski talasi. Talasna dužina gama zračenja veoma je mala, pa je, prema tome, energija gama-fotona vrlo velika. Dok energija rendgenskog zračenja za tehničku upotrebu ide i do nekoliko keV, energija gama-zračenja ide i do nekoliko MeV [8].

Merenja su pokazala da gama-fotoni emitovani iz različitih radioaktivnih supstancija imaju različitu energiju.

U principu, za zaštitu od gama zračenja koriste se materijali napravljeni od elemenata velikog rednog broja koji dobro apsorbuje gama-zračenje čija debljina se određuje prema očekivanim maksimalnim intenzitetima zračenja. Takvi materijali su olovo, betonski zidovi, zemljane prepreke itd.

Interakcijom zračenja sa materijom kroz koju prolazi, menjaju se osobine samog zračenja, kao i svojstvo prostora u blizini interakcija. Kinetička energija upadnih čestica se predaje supstanci u okruženju. Mehanizmi kojima dolazi do razmene energije su jonizacija i ekscitacija, odnosno, interakcija zračenja sa materijom u najvećoj meri se odigrava u elektronskom omotaču atoma. Interakcijom zračenja, stvara se veliki broj eksitovanih i ionizovanih atoma i molekula, kao i određeni broj sekundarnih elektrona. Ovi sekundarni elektroni takođe mogu izazivati dalje jonizacije i ekscitacije, sve dok imaju energiju dovoljnu da

se tako nešto dešava u pojedinoj sredini. Početni prelazi elektrona, koji se dešavaju duž putanja zračenja, stvaraju hemijski aktivnu materiju, koje predstavljaju fizičku osnovu za kasnije efekte na žive organizme. Na osnovu efekata do kojih dolazi prolaskom zračenja kroz određenu sredinu, ono se može detektovati, kao i izvući neophodne informacije o radioaktivnom jezgru iz koga potiče. Osnovni cilj dozimetrije ionizujućeg zračenja je merenje dejstva zračenja na materiju. Mera dejsta se naziva doza zračenja [9].

### **2.1.1. Dozimetrijske veličine i jedinice**

#### ***Ekspozicija***

Kao prva veličina koja definiše meru zračenja uvedena je ekspozicija na međunarodnom nivou 1928. godine. Definiše se za gama i X zračenje u smislu količine ionizacije koju ono proizvede u vazduhu, uz pretpostavku da je ova količina proporcionalna energiji koju zračenje nosi sa sobom. Sa početka, ekspozicija je definisana kao količina X zračenja koja će stvoriti 1 elektrostaticku jedinicu (ESU) nanelektrisanja, pozitivnog ili negativnog, u masi vazduha od 0.001293 grama. Vazduh pomenute mase pri normalnim uslovima zauzima  $1 \text{ cm}^3$ . Tada ekspozicija ima vrednost jednog rendgena (1R). Nanelektrisanje koje je pod ovom definicijom uzeto u obzir je proizvedeno i direktno, od strane upadnih fotona, kao i ono koje je proizvedeno od strane sekundarnih elektrona. Godine 1962. Međunarodna komisija za radijacione jedinice i merenja (International Commission on Radiation Units and Measurements - ICRU) uvodi novu jedinicu, u skladu sa veličinama u SI sistemu, odnosno, ekspozicija se definiše kao količina nanelektrisanja jednog zraka, koje se stvori u vazduhu, kada svi elektroni oslobođeni u masi  $\Delta m$  vazduha izgube svoju početnu energiju.

Koncept ekspozicije se odnosi na elektromagnetno zračenje i njegovu interakciju u vazduhu. Takođe, oslobođeni elektroni u toj masi vazduha nisu nužno u njoj i apsorbovani, a elektroni koji doprinose stvaranju određene količine nanelektrisanja su delom stvoreni i izvan razmatranog dela vazduha.

Jedinica za brzinu ekspozicije je Rendgen po sekundi [R/s], odnosno kulon po kilogramu i satu.

### ***Apsorbovana doza***

Koncept ekspozicije, kao i definisanje samog Rendgena predstavlja praktični i lako merljiv standard za merenje elektromagnetskog zračenja u vazduhu. Međutim, ovo nije dovoljno da bi se upotrebilo na druge vrste zračenja, kao ni za različite materijale. Sa tim u vezi, primarna fizička veličina koja se koristi u dozimetriji je apsorbovana doza, ili samo doza. Ona predstavlja energiju koja se apsorbuje, od bilo koje vrste zračenja, u jedinici mase bilo kog materijala. Jedinica za apsorbovanu dozu je grej (Gy). Doza od jednog greja odgovara apsorpciji zračenja od jednog džula po jednom kilogramu mase (J/kg).

$$D = \frac{dE}{dm} \quad (10)$$

### ***Ekspoziciona doza (X)***

Za x i  $\gamma$  zrake energije ispod 3 MeV-a, kao količina nanelektrisanja jona istog znaka stvorenih zračenjem u jedinici mase vazduha.

$$X = \frac{dq}{dm} \quad (11)$$

$$1R = 2,6 \cdot 10^{-4} \text{ C/kg}$$

Iz ekspozicione doze može se izračunati apsorbovana doza. Za vazduh i tkiva čovečijeg tela ona iznosi  $1 \text{ C/kg} \equiv 35 \text{ Gy}$ .

### ***Ekvivalentna doza (H)***

Koristi se za opisivanje biološkog dejstva zračenja. Jedinica je **sivert (Sv)**.

$$H = D - Q - N \quad (12)$$

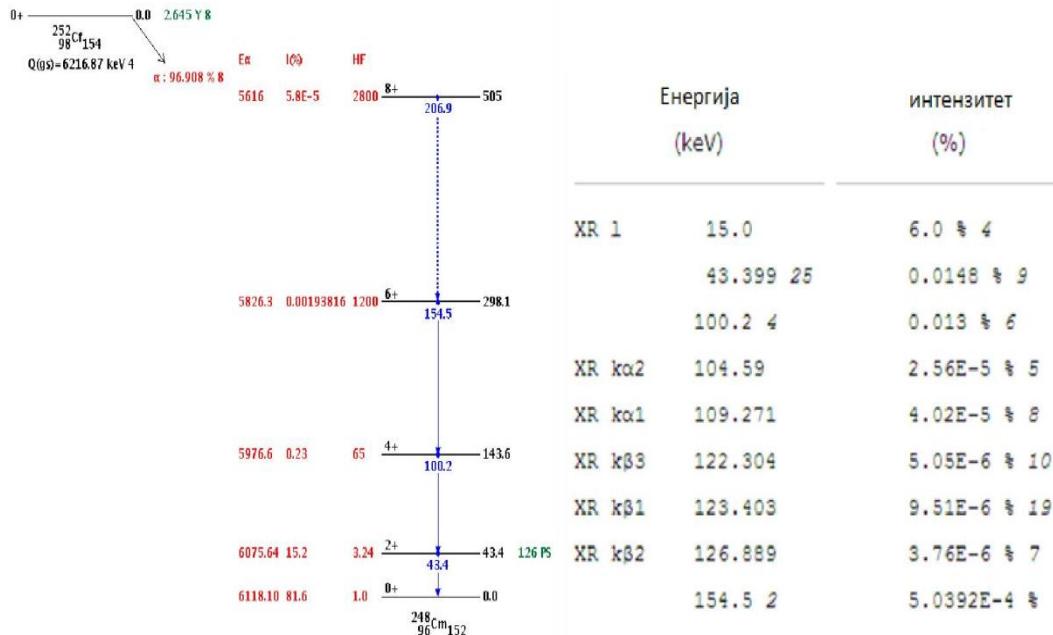
## *Doza kalifornijumovog izvora*

Većina izvora koji se danas primenjuju u medicinske svrhe su gama emiteri:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{125}\text{I}$  i drugi. Dok  $^{252}\text{Cf}$  predstavlja jedini radioizotop koji se koristi u radioterapiji kao emiter neutrona.

Kao što je poznato,  $^{252}\text{Cf}$  kao radioaktivni element se raspada putem dva kanala:  $\alpha$  raspadom i spontanom fisijom.

Kanal spontane fisije  $^{252}\text{Cf}$  je zaslužan za emitovanje neutrona. O brojnosti i energijama fotona je već bilo reči.

Alfa raspadom kalifornijum se transformiše u  $^{248}\text{Cm}$ , u osnovnom stanju ili nekom od pobuđenih stanja. U pobuđenim stanjima se  $^{248}\text{Cm}$  zadržava relativno kratko, te prelazi u osnovno stanje emitovanjem gama zrečenja. Sledi šematski prikaz pobuđenih stanja  $^{248}\text{Cm}$  kao i energije gama zračenja emitovane prilikom prelaza u osnovno stanje:



*Slika 2.2. – Šema emitovanja gama fotona i njihove energije za izvor  $^{252}\text{Cf}$ .*

Stoga, kalifornijum emituje pored neutrona i gama fotone, alfa i beta čestice. Međutim, usled kratkog dometa  $\alpha$  i  $\beta$  zračenja, ono ne uspeva da napusti kapsulu izvora, tako da neutronska i gama

zračenje mogu itereagovati sa sredinom u kojoj se izvor nalazi, odnosno dati doprinos ukupnoj dozi. Neutronsko i gama zračenje imaju različite osobine pri interakciji sa materijom. Kako je za neutronsko zračenje karakterističan visok linearni transfer energije, njegova biološka efikasnost je veća u odnosu na gama zračenje, za faktor kvaliteta Q. Procenjuje se da je ekvivalentna doza neutronskog zračenja 6 puta veća od gama zračenja. Iz ovog razloga, kod medicinskih kalifornijumovih izvora doprinos gama zračenja ukupnoj dozi se zanemaruje [9].

### ***Određivanje gama konstanti izotopa***

Za veliki broj radionuklida koji se koriste u dozimetriji zračenja, ili nekoj od praktičnih primena, a emituju gama zračenje, izračunavaju se gama konstante koje predstavljaju poznate, tablične vrednosti, dostupne svima. Ovo se radi za svaki pojedinačni radioizotop [10]. Takođe, gama konstante se računaju i za radioizotope koji se nalaze u ravnoteži sa svojim potomcima [11]. Vrednosti za svaki od dva slučaja se dobijaju, kako za sam nuklid, tako i za izvor koji sadrži radionuklid. Drugim rečima, uračunavaju se i efekti apsorpcije dela gama spektra od strane kapsula izvora koji zadržavaju [12].

Vrednost gama konstante  $^{252}\text{Cf}$ , je takođe poznata i ona je u tabličnim vrednostima data:

$$G=1,131 \cdot 10^{-5} (\text{mSv/h})/\text{MBq}.$$

Ovo predstavlja vrednost za sam kalifornijum. Često se navodi i atenuacioni koeficijent olova, sa debljinom olovnog štita posle kojeg će se obezbediti 95 % početne doze [13].

## **2.2. Metoda gama-spektrometrije**

Metoda gama-spektrometrije se zasniva na detekciji i registraciji efekta usled interakcije  $\gamma$ -zračenja koje je nastalo nakon radioaktivnog raspada nuklida sa materijalom detektora [14]. Gama-spektroskopsko merenje omogućava određivanje energije i broja fotona koje emituje izvor, što se koristi za identifikaciju prisutnih radionuklida i određivanja njihovih aktivnosti.

Koncentracije aktivnosti radionuklida merene su u radiometrijskoj laboratoriji Instituta za geologiju u Beogradu. Korišćen je germanijumski poluprovodnički spektrometar (HPGe) proizvođača ORTEC sa pratećim elektronskim komponentama i ORTEC softverom za analizu spektara. Relativna efikasnost detektora je 28 % sa energetskom rezolucijom od 2 keV na liniji 1,33

MeV  $^{60}\text{Co}$ . Proširena merna nesigurnost određenih koncentracija aktivnosti ( $k = 2$ ) iznosi 15 %. Pre merenja spektara izvora od interesa, potrebno je izvršiti etaloniranje spektrometra, kako energetsku kalibraciju tako i kalibraciju na efikasnost i proveru linearnosti odziva. Energetska kalibracija omogućava povezivanje pozicije pikova u spektru sa odgovarajućim energijama gama-zraka za poznate izvore, odnosno povezivanje kanala multikanalnog analizatora sa energijom apsorbovanom u detektoru. Multikanalni analizator treba da karakteriše linearni odziv u čitavom opsegu energija.

Energetska kalibracija se izvodi merenjem spektra kalibracionih izvora koji emituju gama-fotone sa poznatim energijama tako da je moguće povezati dobijene pozicije pikova sa poznatom energijom gama-fotona. Tada je moguće u nepoznatim uzorcima, na osnovu prethodno urađene energetske kalibracije, identifikovati radionuklide na osnovu dobijenih pikova na određenim energijama.

U gama-spektrometriji, pored određivanja energija upadnih fotona, potrebno je povezati ukupnu površinu ispod pika na određenoj energiji sa aktivnošću izvora. Apsolutna efikasnost pika energije predstavlja odnos površine pika ukupne energije u merenom spektru prema broju gama-fotona emitovanih iz izvora.

### 2.3. Germanijumski detektori

Germanijumski detektori su značajno pogodniji za detekciju gama zračenja od silicijumskih. Njihova prednost ogleda se, pre svega, u značajno većem rednom broju ( $Z_{Si} = 14$ ,  $Z_{Ge} = 32$ ). Zbog ove činjenice presek za fotoefekat je oko 60 puta veći kod germanijuma nego kod silicijuma. Međutim, da bi bio operativan, kristal germanijuma mora biti ohlađen do temperature tečnog azota. Napredak u tehnologiji proizvodnje poluprovodnika doveo je do mogućnosti stvaranja skoro čistih kristala germanijuma, sa koncentracijama jednog atoma primešenog na  $10^{10}$  atoma germanijuma u  $\text{cm}^3$ . Pogodnost detektora sa germanijumom ovako velike čistoće je u tome što se ne moraju svo vreme održavati na niskim temperaturama.

Besprimesni germanijumski detektori (HPGe – High Purity Germanium) su detektori koji imaju p-i-n strukturu sa inverzno polarisanim pn-spojem, što rezultuje stvaranjem jakog električnog polja unutar besprimesnog sloja. Kada foton dospe u besprimesni sloj dolazi do interakcije sa elektronima i kreira se veliki broj parova elektron – šupljina. Količina stvorenih parova proporcionalna je energiji upadnih fotona.

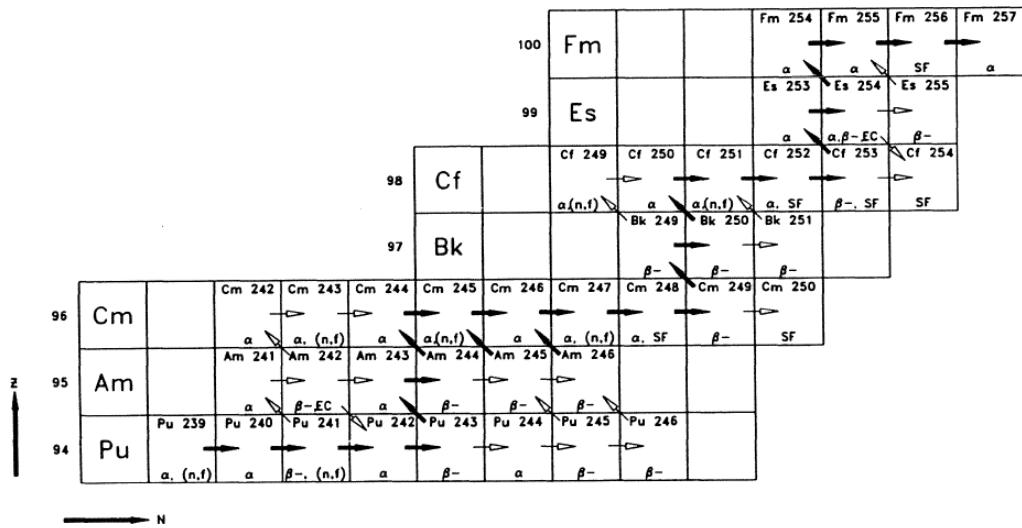
HPG-e detektori mogu se razlikovati po svom obliku, geometriji i osnovnim karakteristikama. U zavisnosti od toga, svaki detektor je pogodan za merenja u određenom energetskom opsegu. Osnovni tipovi HPG-e detektora su:

- Koaksijalni detektori – imaju najširi energetski opseg. Mogu da detektuju gama zrake od ispod 5 keV pa do nekoliko MeV. Imaju oblik kružnog cilindra. Jedna od njihovih specifičnih prednosti je što mogu da procesiraju fotone od jednog do drugog kraja cilindra i preko cele bočne strane, što rezultuje velikom korisnom površinom i velikom verovatnoćom za interakciju.
- Polu-planarni detektori – koriste se u opsegu od ispod 5 keV do nekoliko stotina keV. Imaju mnogo veću energetsku rezoluciju od koaksijalnih do gornje granice energetskog opsega, iznad ove vrednosti rezolucija opada i pikovi gube simetriju. Oblikom je cilindrični, pri čemu imaju širinu veću od dužine i detektuju fotone samo jednom površinom. Na energetsku rezoluciju utiče i veličina detektora pa potreba za određenom rezolucijom utiče na dimenzije kristala.
- Detektori x-zraka – dizajnirani su za energije od 500 eV do preko 60 keV. Malih su dimenzija, ali imaju najbolju energetsku rezoluciju od svih detektora u čvrstom stanju. Kod ovih detektora sastav materijala ulaznog prozora određuje donju granicu energije koja se može posmatrati [15].

### 3. Kalifornijum

#### 3.1. Proizvodnja kalifornijuma

Većim delom kalifornijum koji se proizvodi danas dolazi iz Ouk Ridž (Oak Ridge) nacionalne laboratorije u Sjedinjenim Američkim Državama, odnosno iz reaktora visokog fluksa izotopa, koja je počela sa radom sredinom šezdesetih godina prošlog veka. Primaran cilj ove laboratorije je bila proizvodnja  $^{252}\text{Cf}$  i ostalih transplutonijumske elemenata. U reaktoru visokog fluksa izotopa, izotop kalifornijuma se stvara serijom zahvata neutrona od strane jezgra meta, kao i beta raspadima. Zahvat neutrona povećava maseni broj jezgra, dok beta raspadima se povećava redni broj jezgra. Sledeća slika pokazuje šematski tok reakcija do krajnjeg cilja.



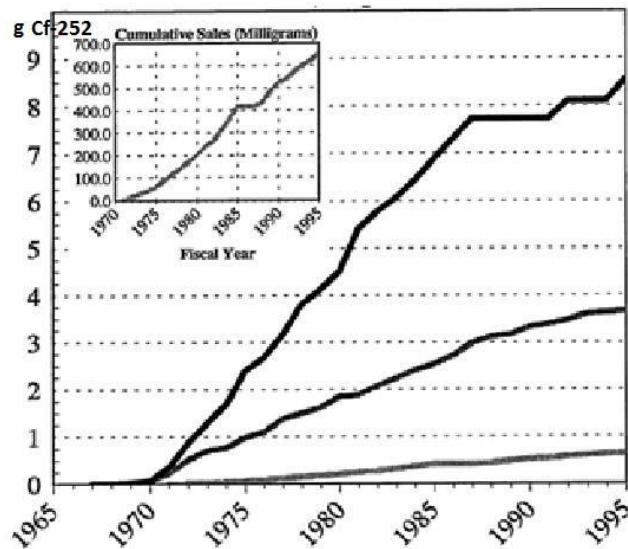
Slika 3.1.- Šema proizvodnje  $^{252}\text{Cf}$ .

Prinos  $^{252}\text{Cf}$  je kontrolisan od strane nekoliko parametara: osobinama fluksa upadnih čestica, kao i različitim destruktivnim reakcijama koje se dešavaju. Primer destruktivnih reakcija po dobijanje potrebnog kalifonijumovog izotopa su fisije  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{254}\text{Cm}$ ,  $^{249}\text{Cf}$  i  $^{251}\text{Cf}$ . U destruktivne reakcije spadaju i beta raspadi jezgara. Najznačajniji su beta raspadi  $^{241}\text{Pu}$  na  $^{241}\text{Am}$  i  $^{249}\text{V}\text{k}$  na  $^{249}\text{Cf}$ , koji imaju velike efikasne preseke za fisiju [16].

Na početku proizvodnje,  $^{252}\text{Cf}$  se dobijao gađanjem mete od  $^{242}\text{Ru}$ . Upadni neutroni su termalni, fluksa  $2$  do  $3 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$  koji se veoma dobro može održavati unutar reaktora. Korišćenje plutonijumovog izotopa  $^{242}\text{Pu}$ , pre nego izotopa  $^{239}\text{Pu}$ , je iz razloga što se na ovaj način povećava doprinos proizvodnji  $^{252}\text{Cf}$  zaobilaženjem gubitaka usled fisije  $^{239}\text{Pu}$  i  $^{241}\text{Pu}$ . Takođe, na ovaj način apsorpcija neutrona je manja. Do 1968. godine većina  $^{242}\text{Pu}$  je transmutovana u  $^{244}\text{Cm}$ . Kirijum

dobijen prilikom proizvodnje kalifornijuma, zajedno sa onim koji se dobija u zasebnim procesima, na dalje postaje nova meta za dobijanje  $^{252}\text{Cf}$ . Korišćenjem  $^{244}\text{Cm}$  kao mete rezultovalo je značajnim povećavanjem njegovih težih izotopa. Procentualni udeo  $^{244}\text{Cm}$  u materijalu mete opada sa 90 % na oko 35 %, u najvećoj meri u korist  $^{246}\text{Cm}$  i  $^{248}\text{Cm}$ . Posledica ovoga je povećavanje stope proizvodnje  $^{252}\text{Cf}$ . Povećanje u proizvodnji dovodi do smanjenja gubitaka usled fisije  $^{245}\text{Cm}$ , kao i smanjenjem broja neutrona koji je potreban da se zahvati. Današnja proizvodnja teče ozračavanjem većeg broja mete tokom vremenskog period od 6 do 8 meseci u reaktoru visokog fluksa.

Tek posle 1970. godine, komisija za atomsku energiju (Atomic Energy Commission) dozvolila je mogućnost kupovine po ceni 10 dolara po mikrogramu. Na sledećoj slici na grafiku može se videti kako je tekla ukupna proizvodnja i prodaja kalifornijuma u gramima do 1995. godine [17].



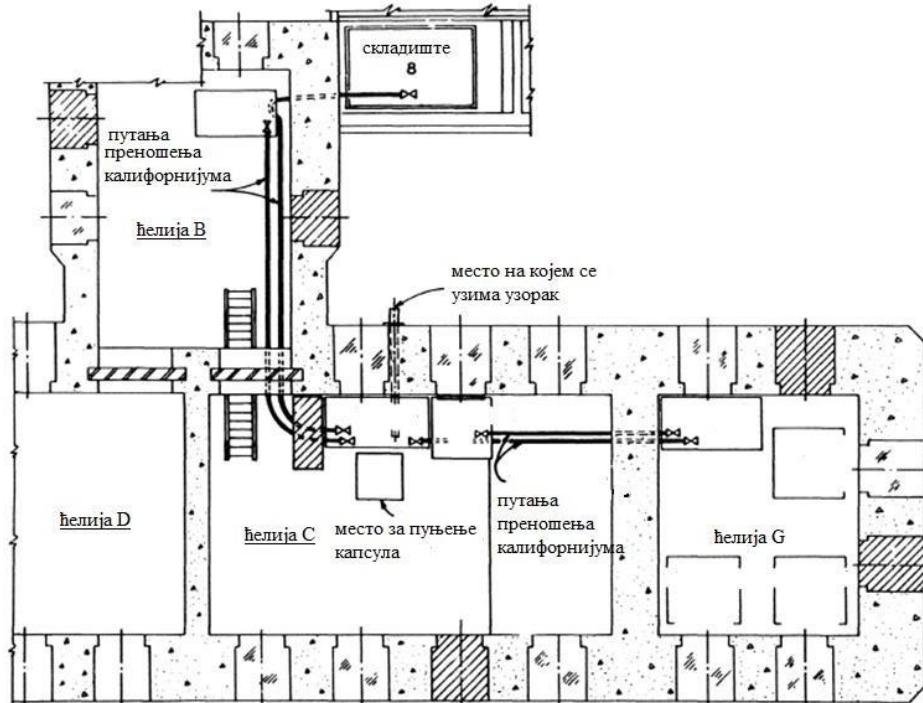
Slika 3.2. - Kumulativna proizvodnja  $^{252}\text{Cf}$ .

### 3.1.1. Radiohemijjsko procesuiranje kalifornijuma

Primarni ciljevi ovakvog postrojenja su sledeći:

- Krajnje prečišćavanje  $^{252}\text{Cf}$  od lantanida i ostalih aktinidskih elemenata.
- Razdvajanje zbog ponovnog korišćenja potomka alfa raspadom  $^{248}\text{Cm}$  od već prečišćenog  $^{252}\text{Cf}$ .
- Proizvodnja izvora neutronskog zračenja kompatnih dimenzija različitih oblika i namena.

Postrojenje za hemijsko prečišćavanje kalifornijuma se može predstaviti Slikom 3.3., na kojoj se vidi pogon za Radiohemijjsko inženjerstvo i razvoj pri nacionalnoj laboratoriji u Ouk Ridžu (Radiochemical Engineering Development Center of ORNL).



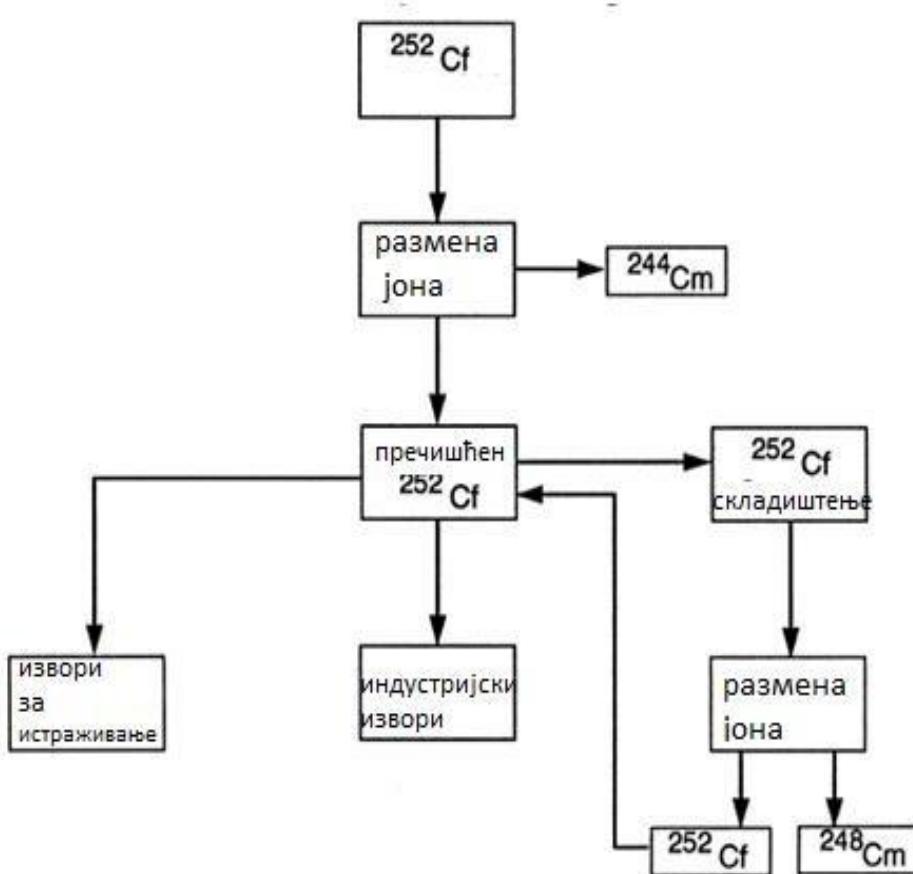
Slika 3.3. - Postrojenje za hemijsko prečišćavanje kalifornijuma.

Kompletan postupak koji podrazumeva baratanje sa radioaktivnim materijama se obavlja unutar 1.4 metara debele G čelije. Postupak je podeljen na četiri jedinice u kojima se nalazi potrebna oprema za prečišćavanje kalifornijuma, kao i izradu različitih tipova izvora. U sastavni deo opreme spadaju komore za razmenu jona pri uslovima visokog pritiska, u kojima se odvaja  $^{248}\text{Cm}$ . Pećnice visoke temperature, komore za održavanje visoke teperature, zavarivači kapsula,

detektori koji registruju curenje helijuma, kao i brojači za kontrolu broja detektora su neke od stavki koje čine sastavnu opremu za proizvodnju izvora. U ovom delu se takođe priprema primarna kapsula izvora i sprovode njena prva testiranja. Adekvatan sistem prenosa radioaktivnog izvora je ugrađen, da bi se na taj način brzo i bezbedno preneo do bazena za odlaganje.

Kalifornijum koji se izvuče iz ozračivanih meta se prečišćava na najbolji mogući način od fisionih produkata, kao i drugih nečistoća. Pažnja se posvećuje uklanjanju ostataka kirijumovih izotopa, pogotovo  $^{244}\text{Cm}$ . Zagađivanje ovim izotopom kalifornijuma, kao i njegovim potomkom  $\alpha$  raspada se može praktično u potpunosti eliminisati.

Procesuiranje kalifonijuma se može predstaviti sledećom slikom.



Slika 3.4. - Ciklus kalifornijuma.

Prvo kalifornijum prolazi kroz proces hromatografske razmene jona da bi se uklonili tragovi kirijuma i ostalih aktinidskih elemenata, ostalih u prvobintom procesu. Tada postoje dve opcije. Jedna je da se pročišćeni kalifornijum odmah koristi za pravljenje neutronskog izvora. Druga opcija je da se njime napune platinumske kapsule i odloži se na oko dve godine da bi se

dozvolio raspad kalifornijuma, prvenstveno na  $^{248}\text{Cm}$ . Pri kraju perioda poluraspada, izvlači se  $^{248}\text{Cm}$  pa se preostali kalifornijum ili stavlja u kapsule od platine na još jedan ciklus raspada, ili se postavlja za pripremu neutronskih izvora u različite svrhe.

Sva hemijska prerađivanja se odvijaju u odeljcima unutar G-ćelije. Ovi procesi uključuju razmenu jona pri visokom pritisku, hromatografsko razdvajanje, punjenje smolom i kalcinaciju. Takođe, procesi pravljenja, testiranja i kontrole primarnih kapsula izvora se odvijaju unutar ove komore. U procesima se barata sa relativno velikim količinama kalifornijuma, bilo u tečnom, bilo u čvrstom stanju, pa je izražen visok nivo kontaminacije prostorije radioaktivnim supstancama. Sve primarne kapsule i kontejneri za prenošenje se moraju, pre napuštanja, dekontaminirati natapanjem u kiselinu.

Ostatak postrojenja, van G-ćelije, se koristi za pravljenje sekundarnih kapsula za izvore, različitih oblika, zatim, krajnje dekontaminiranje i kontrolu fluksa neutrona, utovar i istovar kontejnera za transport, kao i za skladištenje [18].

### **3.2. Kalifornijum - osobine i izotopi**

Kalifornijum je devedeset osmi elemenat u periodnom sistemu. To je sivi metal, gustine slične olovu i predstavlja šesti transuranski element, koji je dobijen 1950. godine na Univerzitetu Kalifornije u Berkliju.

Prvi izotop kalifornijuma koji je otkriven bio je  $^{245}\text{Cf}$  i dobijen je izlaganjem mete od  $^{242}\text{Cm}$  α-česticama, energije 35 MeV, unutar ciklotrona. Postoji deset njegovih izotopa, koji su svi radioaktivni, međutim, samo pet od njih dovoljno dugo žive da bi predstavljali bilo kakvu opasnost po okruženje. Vremena poluraspada, kao i kanali raspada za prethodno pomenutih pet izotopa su dati u sledećoj tabeli.

Izotopi kalifornijuma imaju kratko vreme poluživota u odnosu na spontanu fisiju. Tako  $^{252}\text{Cf}$  ima vreme od 82 godine, dok je za  $^{254}\text{Cf}$  to 60.5 dana.

Lako se može videti da tako kratki poluživoti odgovaraju velikom broju akata spontane fisije po jedinici vremena i velikoj gustini fluksa fisionih neutrona oslobođenih u ovim aktima.

U Tabeli 3.1. predstavljeni su izotopi kalifonijuma i njihove osnovne karakteristike.

*Tabela 3.1. Prikaz izotopa kalifornijuma.*

Naziv izotopa	Zastupljenost	Period poluraspada	Kanal raspada	Energija raspada [MeV]	Produkti raspada
$^{248}\text{Cf}$	Sintetizovan	333.5 d	$\alpha$ (100 %)	6.369	$^{244}\text{Cm}$
			SF (0.0029%)	0.0029	
$^{249}\text{Cf}$	Transuranski	351 y	$\alpha$ (100 %)	6.295	$^{245}\text{Cm}$
			SF ( $5.0 \cdot 10^{-7}\%$ )	$4.4 \cdot 10^{-7}$	
$^{250}\text{Cf}$	Transuranski	13.08 y	$\alpha$ (99.92 %)	6.129	$^{246}\text{Cm}$
			SF (0.08%)	0.077	
$^{251}\text{Cf}$	Transuranski	898 y	$\alpha$	6.172	$^{247}\text{Cm}$
$^{252}\text{Cf}$	Transuranski	2.645 y	$\alpha$ (96.91 %)	6.217	$^{248}\text{Cm}$
			SF (3.09%)	-	
$^{253}\text{Cf}$	Transuranski	17.81 y	$\beta^-$ (99.69 %)	0.29	$^{253}\text{Es}$
			$\alpha$ (0.31%)	6.126	$^{249}\text{Cm}$
$^{254}\text{Cf}$	Sintetizovan	60.5 d	SF (99.69 %)	-	
			$\alpha$ (0.31%)	5.930	$^{250}\text{Cm}$

Kao rezultat, izotop  $^{252}\text{Cf}$  koji se može dobijati u velikim količinama, može se koristiti kao izvor neutrona. Šesnaest izotopa ovog elementa sa masenim brojevima od 240 do 255 je otkriveno do sada.

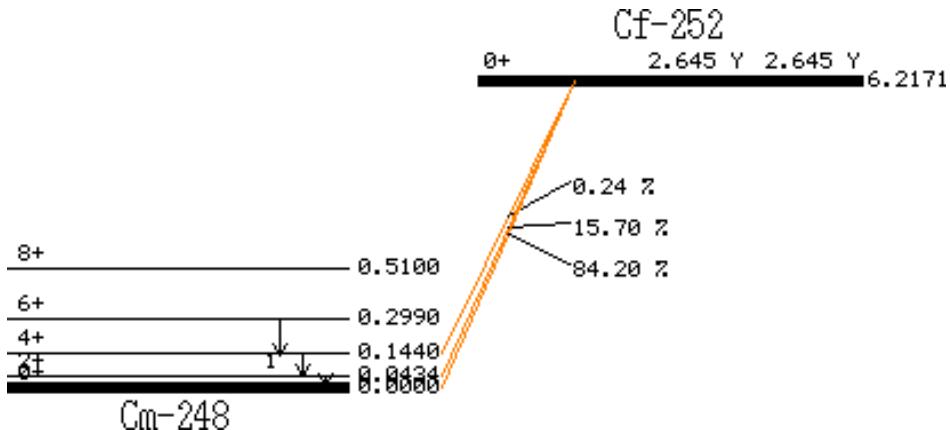
Kao što se može videti iz tabele 3.1. samo tri izotopa kalifornijuma imaju dovoljno visoku vrednost verovatnoće za dešavanje procesa spontane fisije sa jedne strane i dovoljno kratko vreme perioda poluraspada sa druge strane, iz ovih prethodno navedenih razloga njihova primena u praksi je moguća. Za proizvodnju izvora se koriste obično jedinjenja kalifornijuma u Tabeli 3.2. data su moguća jedinjenja kalifornijuma. Takva jedinjenja kalifornijuma se hermetički zatvaraju u metalni cilindar.

*Tabela 3.2. Jedinjenja kalifornijuma.*

Nalelektrianje	Jedinjenje	Formula	Boja
+2	kalifornijum (II) bromid	CfBr <sub>2</sub>	žuta
+2	kalifornijum (II) jodid	CfI <sub>2</sub>	tamno ljubičasta
+3	kalifornijum (III) oksid	Cf <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	žuto-zelena
+3	kalifornijum (III) florid	CfF <sub>3</sub>	svetlo zelena
+3	kalifornijum (III) hlorid	CfCl <sub>3</sub>	smaragdno zelena
+3	kalifornijum (III) jodid	CfI <sub>3</sub>	limun žuta
+4	kalifornijum (IV) oksid	CfO <sub>2</sub>	crno braon
+4	kalifornijum (IV) florid	CfF <sub>4</sub>	zelena

Jedini izotop kalifornijuma koji se proizvodi u komercijalne svrhe je <sup>252</sup>Cf, zbog njegovih specifičnih osobina. Ovaj izotop je prvi put dođen 1952. godine i predstavlja neutronski emiter, te kao takav ima široku primenu i pored toga što je dostupan u veoma malim količinama. Njegova upotreba ide od neutronske aktivacije, preko merača vlage, za otkrivanje nafte i vode u Zemljinoj kori, pa do korišćenja u brahiterapiji, za tretiranje različitih vrsta kancera.

Vreme poluraspada <sup>252</sup>Cf je 2.645 godine, specifične je aktivnosti od 536 Ci/g [1] i ima dva kanala putem kojih se raspada. Naime, emitovanjem α - čestica transformiše se u svog prvog potomka <sup>248</sup>Cm (kirijum). Ovaj kanal zauzima 96.91 % svih raspada <sup>252</sup>Cf. Drugi kanal raspada je putem spontane fisije, putem koje se raspada na veliki broj fisionih produkata, sa različitom verovatnoćom nastanka. Na spontanu fisiju odlazi 3.09 % od ukupnog broja raspada. Usled raspada fisijom, kalifornijum emituje  $4.4 \cdot 10^9$  neutrona po kiriju svoje aktivnosti [18]. Raspad <sup>252</sup>Cf emitovanjem alfa čestica karakteriše emitovanje nekoliko grupa alfa čestica, prosečne energije od oko 6.11 MeV. Kao potomak raspada nastaje <sup>248</sup>Cm. Alfa prelazi se mogu grafički predstaviti sledećom slikom:



Slika 3.5. - Šema α raspada  $^{252}\text{Cf}$ .

Prilikom raspada kalifornijuma, postoje dva kanala. Alfa kanal se dešava u 96.908 %, ostatak ide preko kanala spontane fisije.

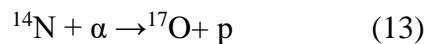
Relativni intenziteti emitovanja alfa čestica pojedinih energija su predstavljeni tabelarno [19].

Energija(keV)	relativni intenzitet (%)
6118.24	84.2
6075.77	15.7
5976.6	0.24
5826.3	0.002
5616	6E-5

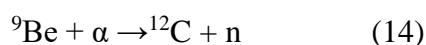
Prosečna energija α čestica je 6.11 MeV. Usled alfa raspada, oslobođa se toplota u iznosu 39.07 W po gramu kalifornijuma.

### 3.3. Fisija

Koristeći se onim što je bilo dostupno u prirodi, Raderford je ispitivao fenomene vezane za rasejanje alfa čestica na lakin jezgrima. Ovi eksperimenti su doveli do prve veštačke transmutacije. To je uspelo reakcijom:



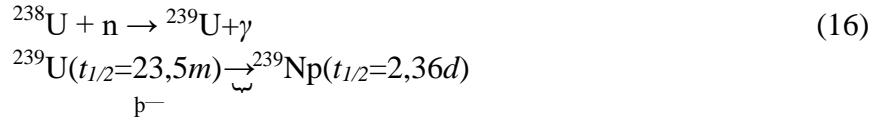
Ohrabreni ovim otkrićem, Raderford i Čedvik su eksperimentalno pokazali da skoro svi elementi do natrijuma emituju protone, kada se bombarduju alfa česticama. Ovi eksperimenti su vodili do otkrića neutrona, kroz poznatu istorijsku reakciju:



Od 1934. godine veliki broj elemenata je bombardovan neutronima. Glavna ideja je bila da se prilikom zahvata neutrona od strane bombardovanog jezgra, proizvede izotop koji ima maseni broj veći za jedan. Kako je ovo jezgro nestabilno, odnosno sada ima višak neutrona, doći će do emisije beta čestice, čime će se omogućiti stvaranje stabilnog jezgra, sa rednim brojem većim za jedan. Ovo se može predstaviti:



Kako je zadnji element u prirodi uranijum, ako bi se bombardovao neutronima na primer  ${}^{238}U$ , prilikom zahvata, dobio bi se nestabilan  ${}^{239}U$ , te emisijom  $\beta$  negativne čestice nastao bi element sa rednim brojem 93.



Neptunijum je prvi transuranski element [18], odmah iza urana pa je i dobio naziv po planeti Neptun, kako je ona odmah iza planete Uran. Tako je i sa sledećim transuranskim elementom, plutonijumom. Tokom ovih eksperimenata vršena je i radiohemija analiza, ne bi li se ispitala svojstva novonastalih elemenata. Međutim, izvori neutrona u to doba su bili slabog intenziteta, pa se i stvarala neznatna količina novih nestabilnih jezgara, što je hemijske analize činilo vrlo nesigurnim. Daljim istraživanjem pokazano je da prilikom zahvata neutrona teža jezgra mogu da se podele na dva lakša fragmenta, odnosno da dožive fisiju.

Kako je pomenuto, fisija predstavlja spontano ili indukovano cepanje jezgra. Ako se posmatra neko jezgro,  $A_Z X$ , ono može u principu da se podeli na različite načine. Međutim, ako posmatramo najjednostavniji, postoje dva fragmenta:

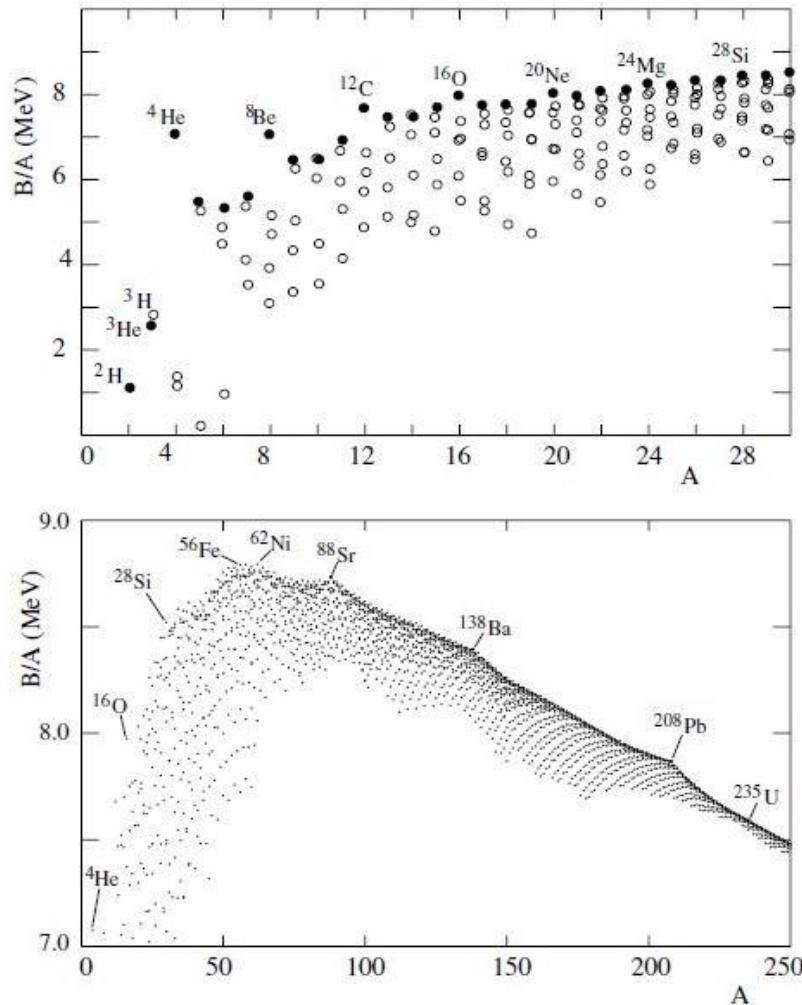


Kako u nuklearnim reakcijama dolazi do transformacije materije u energiju i obrnuto, zakon održanja mase i energije zajedno treba da važi, odnosno da ukupna energija kao zbir totalnih energija svih čestica pre nuklearne reakcije je jednak zbiru energija produkata reakcije.

Energetski ekvivalent reakcije, odnosno razlika masa mirovanja pre i posle reakcije u ovom slučaju se može napisati:

$$Q_f = m(A_1 + A_2, Z_1 + Z_2)c^2 - ((m(A_1, Z_1) + m(A_2, Z_2))c^2 = \\ = B(A_1, Z_1) + B(A_2, Z_2) - B(A_1 + A_2, Z_1 + Z_2) \quad (18)$$

Iraz  $V(A, Z)$  predstavlja vezivnu energiju pojedinog atoma [19]. Dalje, ovu vezivnu energiju možemo predstaviti grafički podeljenu sa masenim brojem.



Slika 3.6. - Energija veze atoma, kao funkcija masenog broja, po jednom nukleonu.

Vrednosti energije veze su pozitivne veličine, odnosno masa bilo kog jezgra je manja od zbiru masa pojedinih nutrona. Sa grafika se može zaključiti da do  $A=16$  postoji nagli porast energije veze po nukleonu, sa lokalnim maksimumom kod masenog broja 4. Nakon masenog

broja 16 dolazi oblast sa slabijim porastom energije po nukleonu, koja se proteže do oko 60, gde je dostignut maksimum. Dakle, najstabilnija jezgra leže u ovoj oblasti, i primeri takvih jezgara su gvožđe, kobalt, nikal.

Kako bi jezgro bilo stabilno, nuklearne sile bi trebalo da budu većeg intenziteta u odnosu na Kulonove sile, koje deluju između protona u jezgru. Smanjivanje energije veze po nukleonu se može objasniti činjenicom da sa porastom broja protona raste i intenzitet odbojne sile, što dovodi do sveukupnog smanjenja energije veze.

Slika 3.6 na najbolji mogući način pokazuje činjenicu zbog koje je nuklearna fisija našla ogroman broj primena. Naime, prilikom cepanja teškog jezgra, primera radi A oko 240, koje ima vezivnu energiju oko 7.6 MeV po nukleonu, na dva lakša jezgra, vezivna energija novonastalih jezgara je veća, oko 8.5 MeV. To znači da stvaranje dva jezgra koja su jače spregnuta dovodi do oslobođanja energije, od oko 1 MeV po nukleonu. Odnosno

$$Q_f \sim 240(8,6-7,5) \sim 220 \text{ MeV} \quad (19)$$

Ova energija se oslobađa u vidu kinetičke energije produkata. U realnom raspadu, oslobođena energija je nešto niža, jer prilikom fisije nastaje i određeni broj slobodnih neutrona, pa se energija koja se oslobodi može napisati kao:

$$Q_f \sim 220 \text{ MeV} - w \cdot 8,5 \text{ MeV} \quad (20)$$

Gde je  $w$  prosečan broj neutrona koji nastaju prilikom fisije i uzima se da je 2.5. U ovom primeru oslobođena energija iznosi oko 200 MeV.

Prilikom cepanja teškog jezgra, najčešće dolazi do podele na dva jezgra, uz oslobođanje određenog broja neutrona. Verovatnoća distribucije krajnjih produkata je sa dva maksimuma, odnosno, asimetrična fisija. Primer kod fisije  $^{235}\text{U}$ , indukovane termalnim neutronom:

- Prvi maksimum distribucije je sa  $A \sim 95$  ( $\text{Br}, \text{Kr}, \text{Sr}, \text{Zr}$ )
- Drugi maksimum distribucije je sa  $A \sim 140$  ( $\text{I}, \text{Xe}, \text{Ba}$ )

Broj neutrona koje imaju jezgra u okolini ova dva maksimuma je 50, odnosno 82. Usled viška neutrona unutar jezgara fisionih produkata, dva fisiona fragmenta su nestabilna, nalaze se ispod linije stabilnosti, pa se samim tim raspadaju  $\beta$ - raspadom. Ovaj proces je uglavnom relativno brz, odnosno njihova vremena poluraspada su brza, sa njihovim povećavanjem, kako se približavaju liniji stabilnosti sa donje strane.

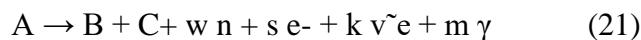
Proces fisije stvara veliki broj produkata, koji se mogu klasifikovati:

- Dva fisiona fragmenta, koja su  $\beta$ - nestabilna.

- Ostale čestice, uglavnom neutroni emitovani prilikom cepanja teškog jezgra, i fotoni, koji se emituju od strane primarnih fisionih fragmenata nastalih u visokopobuđenim stanjima.
- Naknadne čestice, gde pripadaju elektroni, antineutrini i gama kvanti, koji nastaju u beta raspadima primarnih fisionih fragmenata, kao i njihovih potomaka.

Većinu energije koja se oslobodi prilikom fisije odnose primarni fisioni fragmenti, u vidu njihove kinetičke energije. Ona je reda veličine 75 MeV, odnosno sa početnim brzinama jezgara od oko 107m/s. Kada se uzme u obzir njihova masa, domet im je mali  $\sim 10^{-6}$  m. Prilikom zaustavljanja, kinetička energija se pretvara u termalnu.

Za pojedino jezgro koje podleže fisiji, ukupan energetski bilans se može napisati:



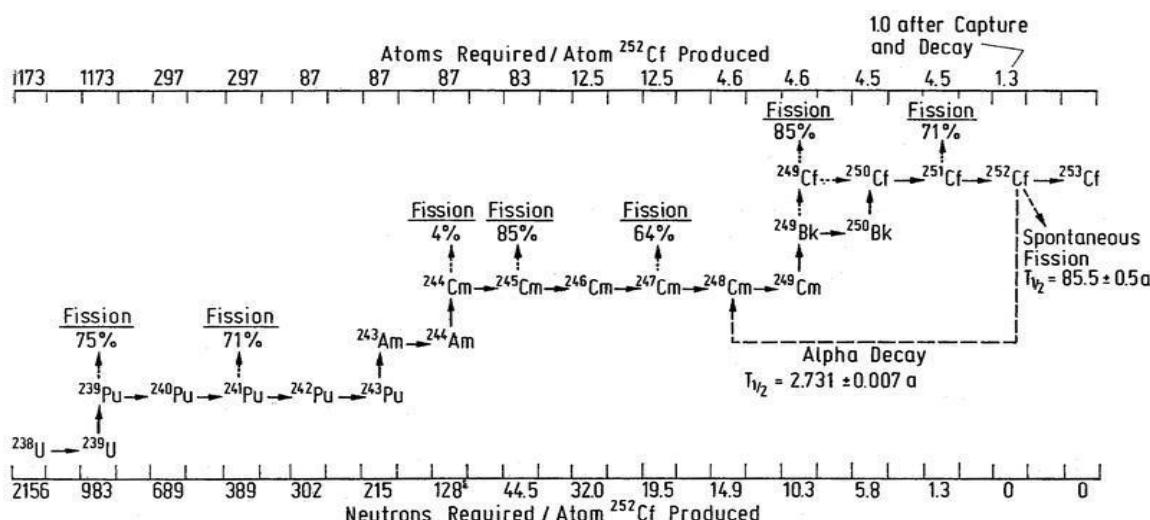
W - broj neutra, S - broj elektrona,

k-broj antineutrina,

m-broj gama fotona koji se emituju prilikom reakcije fisije.

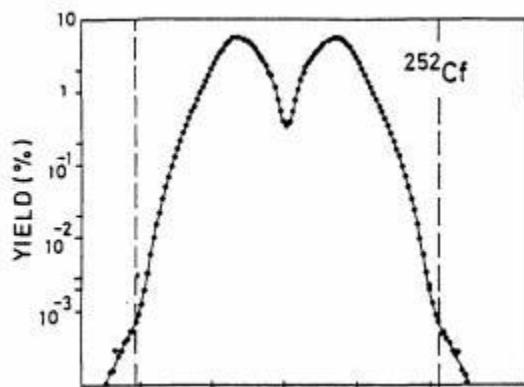
### 3.4. Šema raspada i spektar zračenja

U ovom radu kao izvor zračenja korišćen je izotop  $^{252}\text{Cf}$ . Količine stvorenog kalifornijuma su relativno male, primera radi 2003. godine proizvedeno je oko 0.02525 g  $^{252}\text{Cf}$ . Šema proizvodnje je prikazana na Slici 3.7., ovo je samo radi ilustracije prikazano koliko je složen proces produkcije ovog izotopa.



Slika 3.7. Šema proizvodnje  $^{252}\text{Cf}$ .

Šema raspada  $^{252}\text{Cf}$  data je na Slici 3.5. U gornjem desnom uglu sa isprekidanom strelicom prikazani mogući kanali raspada. Prilikom procesa spontane fisije dolazi do produkcije nekoliko fragmenata i do emisije nekoliko neutrona. U principu grafik verovatnoće stvaranja pojedinih fisionih produkata sličan je grafiku za  $^{235}\text{U}$ , Slika 3.8.



*Slika 3.8. Prikaz verovatnoće stvaranja pojedinih fisionih produkata posle raspada jezgra  $^{252}\text{Cf}$ .*

## 4. Rezultati merenja

Eksperimentalni deo rada odrđen je u Laboratoriji Katedre za nuklearnu fiziku, Prirodno-matematičkog fakulteta, Univerziteta u Novom Sadu. Cilj ovog rada je bio da se testira metoda za određivanje starosti referentnog izvora (vreme proteklo od poslednjeg hemijskog odvajanja kalifornijuma) nedestruktivnom gama spektrometrijskom metodom.

### 4.1 Detektor

Kako bi se izvršila kalibracija sistema, pod istim uslovima snimljen je standard  $^{152}\text{Eu}$  - tačkasti izvor, i referentni materijal  $^{252}\text{Cf}$  koji laboratorija poseduje već duži niz godina. Za analizu je korišćen koaksijalni HPGe detektor, modela GMX-20190 proizvođača EG&G Ortec (Slika 4.1.). Sam detektor poseduje berilijumski prozor, rezoluciju (FWHM) 1.9 keV-a na 1.33 MeV-a ( $^{60}\text{Co}$ ), i relativnu efikasnost 32.4 %. Pasivni štit detektora je napravljen od olova, uz dodatne slojeve kalaja i bakra sa ciljem smanjenja pozadinskog zračenja.



Slika 4.1. HPGe detektor GMX-20190 u olovnom štitu.



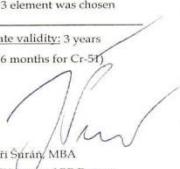
Slika 4.2. Otvor HPGe detektora GMX-20190 – na kapu detektora se postavlja uzorak.

Za obradu dobijenih spektralnih podataka, korišćen je program Genie 2000 u kojem je urađena energetska kalibracija detektora. Program poseduje automatizovan mod rada, što znači da već ima učitan logaritam po kome se vrši identifikacija pikova kao i njihovo fitovanje. Takođe, program poseduje opciju kalibracije energije, oblika pika, efikasnosti, što omogućava obavljanje potpune kvantitativne analize podataka. Za kalibraciju je korišćen spektar tačkastog izvora  $^{152}\text{Eu}$  (proizvođača Areva, početne aktivnosti 405 kBq, na dan 20.01.2005. godine). Referentni materijal  $^{152}\text{Eu}$  je pogodan za kalibraciju gama spektra zato što emituje gama zrake u čitavom spektru različitih energija.

Tabela 4.1.: Sertifikat tačkastog izvora  $^{152}\text{Eu}$ .

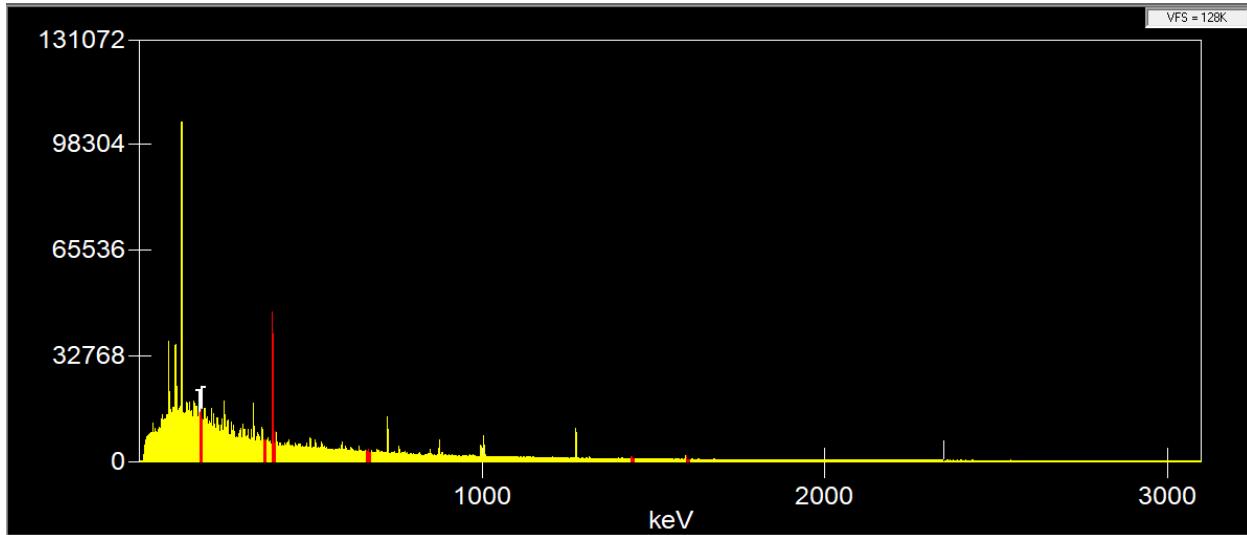
Source of EUROPIUM 152	Reference: EU152EGMA20 n° 22107
Activity (kBq).	405
Reference date	2005/01/20 12h UTC
Extended relative uncertainty (% k=2)	1,5
Daughter products	/
Impurites $\gamma$ at the reference date	$^{154}\text{Eu}$ : 0,30
Leak test	Wipe test: 2005/01/20
No surface contamination	Wipe test: 2005/01/20
Technician measures	R. TEMPERTON

Iz datog spektra očitani su odbroji na linijama od interesa, koje su izabrane na taj način da pokrivaju širi energetski interval (u slučaju  $^{152}\text{Eu}$  od 100-1400 keV-a), a kako bi mogao da se završi proračun bila je potrebna efikasnost detekcije na zadatim energijama. Za izračunavanje efikasnosti detekcije korišćen je program EFFTRAN, budući da se geometrija tačkastog izvora razlikuje od geometrije standardnog referentnog materijala. Kako bi dobili efikasnost detekcije za tačkasti izvor, u programu EFFTRAN korišćen je metod transfera efikasnosti pomoću koga se iz poznate krive efikasnosti dobijene za referentni materijal u jednoj geometriji izračunava kriva efikasnosti za drugu geometriju (tačkasti izvor), što je u ovom slučaju bilo neophodno. Najbolje rezultate za kalibraciju efikasnosti HPGe detektora dobijamo upotrebom standardnog referentnog materijala u cilindričnoj geometriji koji je sastavljen od mešavine različitih gama emitera i pripremljen je u Češkom meterološkom institutu sertifikovanom za pripremu referentnih materijala i kalibracionih izvora. Podaci o samom referentnom materijalu koji je korišćen prikazani su na Slici 4.3.

CERTIFICATE			
Certificate No.:	1035 - SE - 40001-17	Type:	CBSS 2
Serial No.:	191216-1621019		
Radionuclide	Half life, days	Activity, kBq	Combined standard uncertainty, %
Am-241	158004	5,302	1,1
Cd-109	461,9	19,68	1,5
Ce-139	137,64	1,671	1,1
Co-57	271,8	1,306	1,9
Co-60	1925,2	3,315	1,1
Cs-137	10976	2,938	1,3
Sr-88	115,09	3,573	2,2
Sr-85	64,85	5,632	1,9
Y-88	106,63	7,422	1,5
Cr-51	27,704	20,50	1,9
Eu-152	4938,8	3,302	1,2
Mass:	245,0 g	Density:	0,98 $\pm$ 0,01 g/cm <sup>3</sup>
Radionuclide impurities:	gamma < 0,1 %		
Reference date:	20.1.2017		
Homogeneity better than: 1 %			
Description: Radioactive material is homogeneously dispersed in silicone resin. Composition of the matrix: C - 0.324 H - 0.0816 O - 0.216 Si - 0.379 (mass ratio).			
Measuring method: Preparation issues from standard ER solutions whose activities were determined by suitable absolute method. Final control is based on gamma spectrometry on HPGe detector.			
Note: As the criterion of homogeneity standard deviation of the activity value of 1 cm <sup>3</sup> element was chosen (n=10). The volume is calculated from the mass and the density.			
Date of the certificate issue:	4.1.2017 Certificate validity: 3 years (6 months for Cr-51)		
Customer:	Faculty of Sciences, University Novi Sad Trg Dositeja Obradovića 3 21000 Novi Sad Serbia		
Control:	Ing. Vlasta Zdychová, RNDr. Pavel Dryák, CSc.  Ing. Jiri Štráň, MBA Deputy Director of RB Prague 		

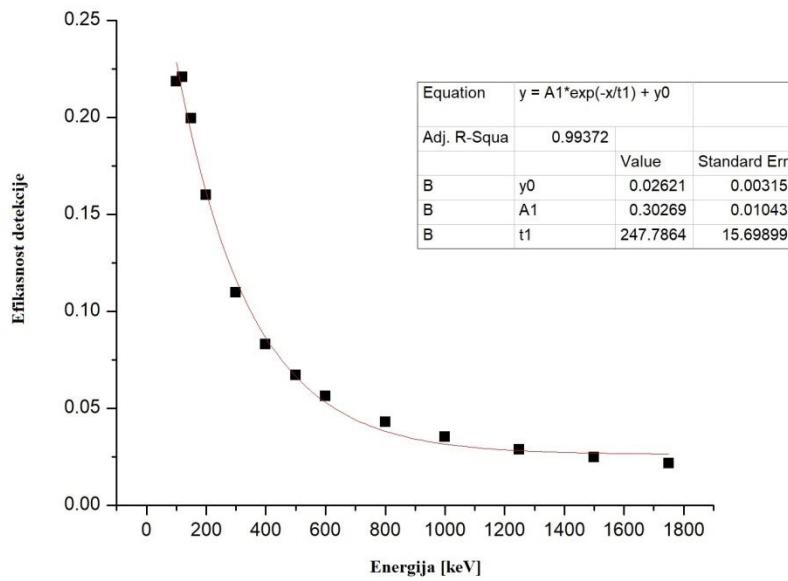
*Slika 4.3. Sertifikat referentnog materijala u cilindričnoj geometriji koji je koršćen za kalibraciju efikasnosti HPGe detektora.*

Primer obrade podataka putem programa Genie 2000 - Gamma Acquisition & Analysis prikazan je na Slici 4.4.



Slika 4.4. Izgled spektra  $^{152}\text{Eu}$  u programu Genie 2000 - Gamma Acquisition & Analysis.

Kalibraciona kriva efikasnosti prikazana je na Slici 4.5.

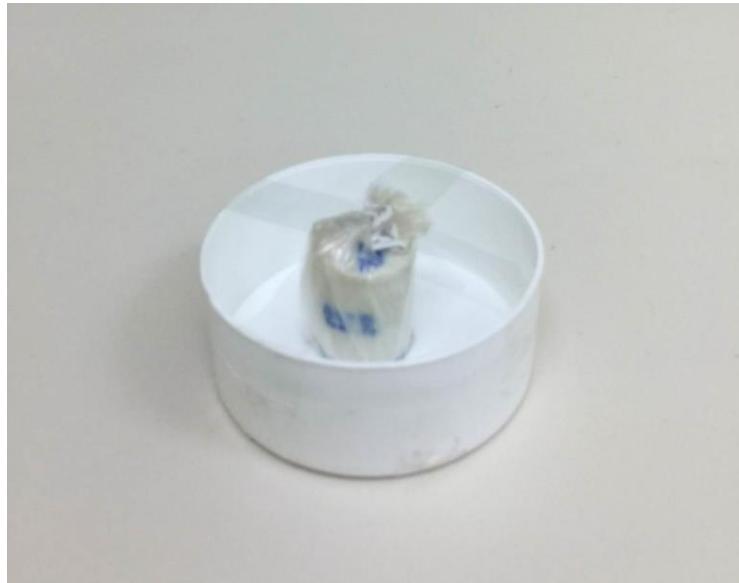


Slika 4.5. Kriva efikasnosti za tačkasti izvor  $^{152}\text{Eu}$ . Zavisnost efikasnosti detekcije od energije gama zraka.

To je urađeno u programu Origin, fitovanjem vrednosti efikasnosti dobijenih iz programa EFFTRAN za tačkasti izvor  $^{152}\text{Eu}$ .

## 4.2. Izvor kalifornijuma

U radu je korišćen tačkasti izvor  $^{252}\text{Cf}$ , Slika 4.6. koji se nalazi u cilindru od plastike prečnika 22 mm i visine 30 mm. Na udaljenosti 1m od izvora izmerena je doza od 0.119  $\mu\text{Sv}/\text{h}$ , a u neposrednoj blizini izvora 0.407  $\mu\text{Sv}/\text{h}$ . Fon unutar prostorije gde se nalazi izvor je 0.101  $\mu\text{Sv}/\text{h}$ . Dozimetrijsko merenje je izvršeno instrumentom Inspector 2000, a procenjena merna nesigurnost je 10 % izmerene vrednosti.



Slika 4.6. Izvor  $^{252}\text{Cf}$ .

## 4.3. Određivanje starosti izvora kalifornijuma

Pod starošću materijala, podrazumeva se proteklo vreme od poslednje hemijske separacije uzorka, što je veoma bitan parametar za nuklearnu forenziku budući da može pružiti informacije o poreklu uzorka ukoliko se takav uzorak nađe van regulatorne kontrole i time može pomoći u istrazi. Sa druge strane često se u laboratorijama koje poseduju radioaktivne izvore mogu naći izvori bez sertifikata, u tom slučaju ovaj metod može poslužiti za procenu starosti i porekla izvora, što je dalje značajno kako bi se procenila bezbednost njegove upotrebe i mere čuvanja, rukovanja, i skladištenja takvog materijala. Postoje razne metode za određivanje starosti radioaktivnog materijala, a jedna od njih koja je korišćena u ovom radu je gama spektrometrijska metoda. Izračunavanjem aktivnosti izotopa  $^{249}\text{Cf}$  i  $^{251}\text{Cf}$  koje se mogu odrediti direktno iz gama

spektra merenjem njihovih karakterističnih gama linija, može se daljim računom doći do aktivnosti željenih izotopa kalifornijuma.

Pod pretpostavkom da su kratkoživeći produkti raspada  $^{252}\text{Cf}$  u sekularnoj radioaktivnoj ravnoteži sa jezgrom pretka, njihove aktivnosti su proporcionalne aktivnostima  $^{250}\text{Cf}$  i  $^{252}\text{Cf}$ , što se vidi na Slici 2.2.

Aktivnosti  $^{249}\text{Cf}$ ,  $^{251}\text{Cf}$  i efektivni proizvodi fisije izračunati su iz gama spektra putem sledeće jednačine:

$$A_i = \frac{N_E}{\varepsilon_E t_m I_E F_{CE}} \quad (22)$$

gde je:

$A_i$  - aktivnost izvora gama zraka;

$N_E$  - neto površina fotopika na energiji E karakterističnoj za radioizotop;

$t_m$  - "live" vreme merenja spektra;

$\varepsilon_E$  - efikasnost detekcije fotopika energije E karakteristične za dati radioizotop;

$I_E$  - verovatnoća emisije energije E karakteristične za dati radioizotop;

$F_{CE}$  - korekcioni faktor za datu energiju karakterističnu za radioizotop.

Vreme koje je proteklo od poslednjeg hemijskog odvajanja od fisijskih proizvoda (starost kalifornijumovog izvora) može se proceniti merenjem odnosa aktivnosti dugoživećeg  $^{137}\text{Cs}$  u odnosu na bilo koji kratkoživeći produkt (koji su u ravnoteži sa oba  $^{252}\text{Cf}$  i  $^{250}\text{Cf}$ ).

Najprikladniji izotopski par je  $^{137}\text{Cs}$  /  $^{132}\text{I}$ , jer njihove povezane gama linije imaju sličnu energiju (slične efikasnosti). Ako je pouzdana kalibracija efikasnosti dostupna u većem energetskom intervalu, starost se takođe može izračunati koristeći  $^{137}\text{Cs}$  i bilo koji od kratkoživećih produkata (SLFP) od  $^{250}\text{Cf}$  i  $^{252}\text{Cf}$ , koji su bili vidljivi u gama spektrima, na primer:  $^{138}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{La}$  i  $^{131}\text{I}$ .

$^{137}\text{Cs}$  i SLFP nastaju spontanim dejstvom dva izotopa od  $^{250},^{252}\text{Cf}$ . Stoga:

$$A_{^{137}\text{Cs}} = A \cdot A_{^{252}\text{Cf}} + B \cdot A_{^{250}\text{Cf}} \quad (23)$$

$$A_{SLFP} = C \cdot A_{^{252}\text{Cf}} + D \cdot A_{^{250}\text{Cf}} \quad (24)$$

gde su faktori A, B, C i D definisani za svaki proizvod cepanja - teških jezgara

$$A, B, C, D = \frac{\lambda_{Fp}}{\lambda_{Fp} - \lambda_{HN}} \cdot (e^{-\lambda_{HN} \cdot t} - e^{-\lambda_{Fp} \cdot t}) \cdot P_{HN} \cdot Y_{FpHN} \quad (25)$$

Dakle, kombinovanjem (2) i (3) dobijamo:

$$\frac{A_{137}Cs}{A_{SLFP}} = \frac{A + R \cdot B}{C + R \cdot D} \quad (26)$$

gde su  $A_{137}Cs$  -ukupna aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  proizvedena izotopima  $^{252}\text{Cf}$  i  $^{250}\text{Cf}$ ;  $A_{SLFP}$  -ukupna aktivnost SLFP proizvedena od izotopa  $^{252}\text{Cf}$  i  $^{250}\text{Cf}$ ; R – težinski faktor jednak je početnom odnosu aktivnosti  $^{250}\text{Cf}$  /  $^{252}\text{Cf}$  [2]. Ubacivanjem poznatih parametara u formula (25) iterativnim postupkom pomoću programa Wolfram Mathematica (Slika 4.7.) dobili smo parametar t koji je neophodan za određivanje starosti izvora  $^{252}\text{Cf}$ . Dobijena je vrednost:

$$t = 340791000 \text{ s} \sim 10.8 \text{ godina}$$

The screenshot shows the Wolfram Mathematica interface with a product trial watermark. The input cell (In[106]) contains the following code:

```

In[106]:= a = (7.289 * 10^(-10) / (7.289 * 10^(-10) - 8.287 * 10^(-9))) * 0.8499 * 6.5
c = (9.550 * 10^(-9) / (9.550 * 10^(-9) - 8.287 * 10^(-9))) * 0.987 * 3.86
0.6417 * (1 - Exp[-1.263 * z]) = (a/c) * (1 - Exp[7.5581 * z])
FindRoot[0.6417 * (1 - e^-1.263 z) = (a/c) * (1 - Exp[7.5581 * z]), {z, 10}]
t = 0.34072078661772043 * 10^9

```

The output cell (Out[108]) shows the result:

```

Out[108]= -0.532766

```

The next input cell (Out[109]) shows the result converted to a positive value:

```

Out[109]= 28.8074

```

The next input cell (Out[110]) shows the result in scientific notation:

```

Out[110]= 0.6417 (1 - e^-1.263 z) = -0.018494 (1 - e^7.5581 z)

```

The next input cell (Out[111]) shows the result with a substitution:

```

Out[111]= {z → 0.340721}

```

The final input cell (Out[112]) shows the result in scientific notation:

```

Out[112]= 3.40721 × 10^8

```

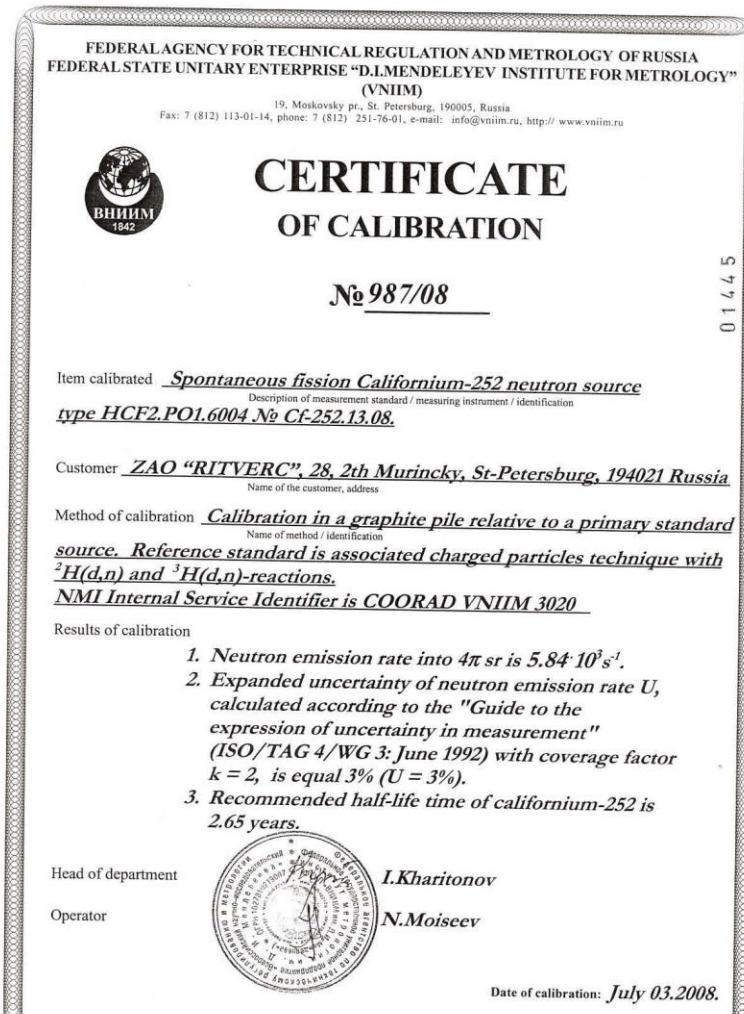
Below the input cells are several buttons for changing the display format: "show all digits", "engineering form", "integer part", "nth digit...", "more...", and "more options".

Slika 4.7. Prikaz iterativnog postupka za dobijanje parametra t za određivanje starosti izvora kalifornijuma u programu Wolfram Mathematica.

Starost izvora je procenjena iterativnim postupkom matematičkom kalkulacijom, pa je veoma teško odrediti mernu nesigurnost dobijenog rezultata, ali se ona može uzeti samo kao procena starosti izvora. Za tačnije podatke o starosti morale bi se uraditi dodatne analize koje prevazilaze

mogućnosti gama spektrometrijske laboratorije, a uz to su i destruktivne što nije uvek poželjno ukoliko želimo da očuvamo izvor u svom originalnom stanju.

Obzirom da izvor kalifornijuma na kome je testiran metod određivanja starosti poseduje sertifikat (Slika 4.8.) koji definiše datum nabavke izvora ali ne i datum njegove poslednje hemijske separacije nije bilo moguće izračunati relativno odstupanje računski dobijene starosti od sertifikovane starosti izvora kao provera eksperimentalnog metoda. Jedino je upoređen rezultat sa dobijenom vrenošću za isti izvor u [2] i dobijeno je odstupanje od 0.91 %.



Slika 4.8. Sertifikat Kalifornijma.

## 5. Zaključak

Izvor  $^{252}\text{Cf}$  ima veliki broj primena u različitim sferama, nauci, istraživanjima, medicini, industriji itd. Prilikom proizvodnje, kalifornijum se u obliku nekog od jedinjenja zatvara unutar nepropusne kapsule. Alfa raspadom,  $^{252}\text{Cf}$  prelazi u energetski pobuđena stanja  $^{248}\text{Cm}$ , te prilikom njihove deekscitacije pojavljuje se u spektru gama komponenta zračenja, dok usled spontane fisije koju  $^{252}\text{Cf}$  doživljava, koristi se kao pouzdani neutronski izvor. Samim raspadima se vrši nagomilavanje produkata raspada,  $^{248}\text{Cm}$  i velikog broja fisionih fragmenata.

Cilj ovog rada je bio da se testira eksperimentalni metod određivanja starosti radioaktivnog izvora što posebnu primenu ima u oblasti nuklearne forenzike. Vrlo često se u laboratorijama za nuklearnu fiziku mogu pronaći stari izvori bez sertifikata ili sa sertifikatom koji ne poseduje podatak o poslednjoj hemijskoj separaciji, u ovom radu je pokazano da primenom relativno jednostavnog računskog postupka i gama spektrometrijskog metoda možemo proceniti starost izvora, što bi uz dodatne analize nečistoća u samom izvoru moglo da ukaže na njegovo poreklo.

Ukoliko bi predmet analize bio stariji izvor onda su dodatne analize neophodne kako bi se tačnije procenila starost. Dodatnim analizama bi se utvrđio početni obim aktivnosti  $^{250}\text{Cf} / ^{252}\text{Cf}$  koji je značajan parametar za procenu starosti starijih izvora, ali nije primenjiv kao samostalan dokaz u oblasti nuklearne forenzike.

## Literatura

- [1] Production, Distribution, and Applications of Californium-252 Neutron Sources R. C. Martin, J. B. Knauer, and P. A. Balo
- [2] Characterization of californium sources by gamma spectrometry: relevance for nuclear forensics: Andrei I. Apostol, Jozsef Zsigrai, Janos Bagi, Michal Brandis, Jovana Nikolov, Klaus Mayer
- [3] D. Stanković, IEEE Trans. Instrum. Meas., Vol. IM-21, 66-69, 1972
- [4] Šćepan S. Miljanić Udžbenik nuklearne hemije, Beograd 2008.
- [5] [https://www.pmf.kg.ac.rs/radijacionafizika/Documents/Muhin/Glava\\_03.pdf](https://www.pmf.kg.ac.rs/radijacionafizika/Documents/Muhin/Glava_03.pdf)
- [6] <http://www.fas.org/sgp/othergov/doe/lanl/lib-www/la-pubs/00326407.pdf> (P. Rinard, Neutron Interactions with Matter)
- [7] Ninkovic, M.M. & Raicevic J.J. (1993). The air kerma rate constant of  $^{192}\text{Ir}$ , Health Phys. 64(1), 79-81
- [8] <https://fizis.rs/dozimetrija-i-zastita-od-radioaktivnog-zracenja>
- [9] Osnove radijacione dozimetrije i zastite od zracenja, Valerija Paic, Guy Paic, Zagreb 1983.
- [10] (NATO ASI Series 29) Jose Feola (auth.), Jacek G. Wierzbicki (eds.)-Californium-252 Isotope for 21st Century Radiotherapy-Springer Netherlands (1997)
- [11] Ninkovic, .M.M. (1987). The air kerma rate constant of  $^{226}\text{Ra}$  in equilibrium with its decay products, Nucl. Instr. Methods, A255, 334-337
- [12] Air Kerma Rate Constants for Nuclides Important to Gamma Ray Dosimetry and Practical Application Marko M. Ninkovic and Feriz Adrovic
- [13] SPECIFIC GAMMA-RAY DOSE CONSTANTS FOR NIJCI-II)ES  
1 M PORI' A NT 'IO D OS I M ET R Y AN D R A D I O LOG 1 C A I.. ASS ES S M E N'I  
Laurie M. Unger\* and D. K . Trubey Date Published - May 1.982
- [14] J. Slivka, I. Bikit, M. Veskovčić, Lj. Čonkić,(2000). Gama-spektrometrija, specijalne metode i primene. Univerzitet u Novom Sadu, Novi Sad
- [15] T. Pivnički. Određivanje efikasnosti HPGe detektora u niskoenergetskom opsegu. Diplomski rad
- [16] Production, Distribution, and Applications of Californium-252 Neutron Sources

R. C. Martin, J. B. Knauer, and P. A. Balo Chemical Technology Division Oak Ridge National Laboratory\* Oak Ridge, TN 37831-6385 U.S.A.

[17] californium 252 A remarkable versatile radioisotope, Irvin W. Osborne - Lee, C. W. Alexander, October 10, 1995. Oak Ridge National Laboratory

[18] CALIFORNIUM-252 NEUTRON SOURCES FOR MEDICAL APPLICATIONS\* A. R. Boulogne and A. G. Evans Savannah River Laboratory E. I. du Pont de Nemours and Company Aiken, South Carolina 29801

[19] Jean-Louis Basdevant James Rich Michel Spiro, Fundamentals In Nuclear Physics From Nuclear Structure to Cosmology Springer

## **Biografija**

Rođena sam 22.03.1994. u Novom Sadu (Republika Srbija). Osnovnu školu „Slavko Rodić“ u Bačkom Jarku sam završila 2009. godine, a Gimnaziju „Jovan Jovanović Zmaj“ 2013. godine, u Novom Sadu. Iste, 2013. godine upisujem Prirodno matematički fakultet u Novom Sadu, studijski program fizika, modul medicinska fizika. Decembra 2017. godine sam diplomirala i postala diplomirani fizičar. 2018. godine, upisujem master studije fizike, na modulu nuklearna fizika.

# **KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA**

**UNIVERZITET U NOVOM SADU  
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET**

*Redni broj:*

**RBR**

*Identifikacioni broj:*

**IBR**

*Tip dokumentacije:*

**TD**

Monografska dokumentacija

*Tip zapisa:*

**TZ**

Tekstualni štampani materijal

*Vrsta rada:*

**VR**

Master rad

*Autor:*

**AU**

Mina Vulović 211m/18

*Mentor:*

**MN**

dr Jovana Nikolov

*Naslov rada:*

**NR**

Odredjivanje starosti izvora  $^{252}\text{Cf}$  nedestruktivnom metodom nuklearne forenzike

*Jezik publikacije:*

**JP**

srpski (latinica)

*Jezik izvoda:*

**JI**

srpski/engleski

*Zemlja publikovanja:*

**ZP**

Srbija

*Uže geografsko područje:*

**UGP**

Vojvodina

*Godina:*

**GO**

2020.

<i>Izdavač:</i>	Autorski reprint
<b>IZ</b>	
<i>Mesto i adresa:</i>	Prirodno- matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad
<i>Fizički opis rada:</i>	Broj poglavlja/ Broj strana/ Broj tabela/ Broj slika 5 / 55 / 5 / 19
<i>Naučna oblast:</i>	Fizika
<b>NO</b>	
<i>Naučna disciplina:</i>	Nuklearna fizika
<b>ND</b>	
<i>Čuva se:</i>	Biblioteka departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu
<b>ČU</b>	
<i>Važna napomena:</i>	nema
<b>VN</b>	
<i>Izvod:</i>	U ovom radu su opisane glavne primene nedestruktivne metode nuklearne forenzičke. za određivanje starosti izvora kalifornijuma. Takođe je detaljno opisano dobijanje $^{252}\text{Cf}$ njegova aktivnost, proizvodnja i nastanak.
<b>IZ</b>	
<i>Datum prihvatanja teme od NN veća:</i>	
<b>DP</b>	
<i>Datum odbrane:</i>	28.7.2020
<b>DO</b>	
<i>Članovi komisije:</i>	
<b>KO</b>	
<i>Predsednik:</i>	dr Nataša Todorović, Prirodno-matematički fakultet, Novi Sad.
<i>Član:</i>	dr Maja Stojanović, Prirodno-matematički fakultet, Novi Sad.
<i>Član (mentor):</i>	dr Jovana Nikolov, Prirodno- matematički fakultet, Novi Sad.

**UNIVERSITY OF NOVI SAD  
FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS  
KEY WORDS DOCUMENTATION**

*Accession number:*

**ANO**

*Identification number:*

**INO**

*Document type:*

**DT**

Monograph publication

*Type of record:*

**TR**

Textual printed material

*Content code:*

**CC**

Final paper

*Author:*

**AU**

Mina Vulović

*Mentor/comentor:*

**MN**

professor Jovana Nikolov

*Title:*

**TI**

Determining the age of the  $^{252}\text{Cf}$  source by the non-destructive method of nuclear forensics

*Language of text:*

**LT**

Serbian (latin)

*Language of abstract:*

**LA**

English

*Country of publication:*

**CP**

Republic of Serbia

*Locality of publication:*

**LP**

Vojvodina

*Publication year:*

**PY**

2020.

*Publisher:* Author's reprint  
**PU**

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

*Physical description:* Chapters/Pages/Tables/Figures  
**PD** 5 / 55 / 5 / 19

*Scientific field:* Physics  
**SF**

*Scientific discipline:* Nuclear physics  
**SD**

*Subject/ Key words:* Forensics, dating  
**SKW**  
**UC**

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

*Note:* none  
**N**

*Abstract:* In this paper describes the main applications of the non-destructive method of nuclear forensics to determine the age of the  $^{252}\text{Cf}$  source. The production, its activity, production and origin are also described in detail.  
**AB**

*Accepted by the Scientific Board:*  
**ASB**

*Defended on:* 28.7.2020.  
**DE**

*Thesis defend board:*  
**DB**  
*President:* PhD Nataša Todorović, Faculty of Sciences, Novi Sad.  
*Member:* PhD Maja Stojanović, Faculty of Sciences, Novi Sad.  
*Member (mentor):* PhD Jovana Nikolov, Faculty of Sciences, Novi Sad.