

UNIVERZITET U NOVOM SADU PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET DEPARTMAN ZA FIZIKU



mr Sofija Forkapić

Istraživanje gasovitih radioaktivnih produkata uranijuma i torijuma

- doktorska disertacija -

Novi Sad, 2013.

Porodici i Prijateljima

HVALA

Hvala što si uz mene kad mi je teško. Hvala što si tu i kad napravim grešku. I za utehu što pružaš mi, hvala ti do neba, Kao i na zagrljaju što tu je kad treba.

> Kada si tu kad trebaš mi jako, Opet tebi hvala ću reći. I ne samo tebi već svakom Ko pomogne mojoj sreći.

> > Mariola Pantelić, ''Srce u zabludi''

Sadržaj:

	Predgovor	1
1.	GLAVA 1 Radioaktivni nizovi uranijuma i torijuma	5
1.1	Prirodna radioaktivnost	5
1.1.1	Primordijalni radionuklidi	5
1.1.2	Kosmogeni radionuklidi	9
1.1.3	Proizvedena radioaktivnost	10
1.2	Radioaktivni nizovi uranijuma i torijuma	12
1.2.1	Pojam ravnoteže u radioaktivnim nizovima	15
1.2.2	Narušavanje ravnoteže u radioaktivnim nizovima uranijuma i torijuma	18
	1.2.2.1 Raspad radona ²²² Rn	19
	1.2.2.2 Raspad torona ²²⁰ Rn	19
1.3	Radijacioni rizik i nivo izlaganja jonizujućim zračenjima	20
1.3.1	Prirodni izvori jonizujućih zračenja	23
1.3.2	Problem NORM-a i TENORM-a	24
1.3.3	Interakcija jonizujućih zračenja sa živim organizmima	26
1.3.4	Radijacioni rizik od radona i definicije dozimetrijskih veličina	27
1.3.5	Dozni konverzioni faktori i koncept AMAD	32
	ANEKS I: JEDINICE DOZIMETRIJSKIH VELIČINA ZA PROCENU DOZA OD RADONA I KONVERZIONI FAKTORI ZA PRETVARANJE JEDINICA	38

2.	GLAVA 2. Gama-spektrometrijska metoda ispitivanja radioaktivnosti	40
2.1	Gama-spektrometrijski sistemi	41
2.2	Oblik i komponente gama-spektra	47
2.3	Kalibracija efikasnosti i energetska kalibracija	49
2.4	Gama-spektrometrijski sistemi u Laboratoriji	52
3.	GLAVA 3. Promptno gama-spektrometrijsko određivanje uranijuma ²³⁸ U u uzorcima iz životne sredine	60
3.1	Fizičke i hemijske karakteristike uranijuma. Osiromašeni uranijum	60
3.2	Gama-spektrometrijsko određivanje koncentracije aktivnosti uranijuma ²³⁸ U	62
3.2.1	Provera postojanja sekularne radioaktivne ravnoteže	66
3.2.2	Određivanje koncetracije aktivnosti ²³⁸ U iz linija ²³⁴ Th i ²³⁴ Pa	67
3.3	Metoda određivanja osiromašenog uranijuma	71
3.3.1	Faktor ravoteže ²³⁸ U / ²²⁶ Ra	72
3.3.2	Granice detekcije osiromašenog uranijuma	75
3.4	Eksperimentalni rezultati	75
3.4.1	Praćenje radioaktivnosti zemljišta sa područja opštine Novi Sad	77
3.4.2	Praćenje radioaktivnosti zemljišta Vojvodine	94
4.	GLAVA 4. Konvencionalne metode merenja radona i torona	105
4.1	Metoda adsorpcije na aktivnom uglju	105
4.2	Alfa-spektrometrijska metoda merenja radona	109
4.2.1	Merenje koncentracije aktivnosti torona pomoću RAD7	113
4.3	Detektori tragova	115

4.4	Rezultati merenja	119
4.4.1	Rezultati merenja koncentracije radona u vazduhu i zemljištu metodom ugljenih kanistera na području opštine Novi Sad	119
4.4.2	Rezultati merenja koncentracije radona trag detektorima CR39 i prva radonska mapa Vojvodine	125

5.	GLAVA 5. Radonska ravnoteža	135
5.1	Ponašanje radonovih potomaka u vazduhu. Pripojena i nepripojena frakcija	135
5.2	Faktor radonske ravnoteže u vazduhu	139
5.3	Metoda merenja faktora radonske ravnoteže u vazduhu	141
5.3.1	Matematički model za izračunavanje koncentracija aktivnosti radonovih potomaka u vazduhu na početku usisavanja	144
5.3.2	Rezultati merenja	147

6.	Zaključak	152
----	-----------	-----

Literatura	154
Biografija	160
Ključna dokumentacijska informacija	161

Predgovor

Prirodna radioaktivnost je prisutna oduvek na planeti Zemlji i svugde oko nas. Poznato je preko 1500 različitih radionuklida koji se mogu grupisati u dve kategorije: prirodni radionuklidi (koji po poreklu mogu biti primordijalni i kosmogeni) i antropogeni radionuklidi koji su nastali kao produkt ljudske aktivnosti. Primordijalni radionuklidi su terestrijalni radionuklidi koji predstavljaju najznačajniji izvor jonizujućeg zračenja u životnoj sredini. To su radionuklidi sa periodom poluraspada uporedivim sa starošću Zemlje (10⁵-10¹⁶ godina) i oni i njihovi produkti raspada u značajnoj meri su zastupljeni u materijalima u životnoj sredini (stenama, zemljištu, vodi, ljudskom telu). Spoljašnje ozračivanje stanovništva dominatno potiče od gama zračenja nastalog raspadima u radioaktivnim nizovima uranijuma ²³⁸U i torijuma ²³²Th, kao i od kalijuma ⁴⁰K. Ovi radionuklidi doprinose i unutrašnjem izlaganju kada putem lanaca ishrane ingestijom ili inhalacijom dospevaju u ljudski organizam i ozračavaju različite organe alfa i beta česticama, kao i gama zračenjem.

Većina prirodnih radionuklida koji postoje na Zemlji (rednog broj Z>82) se grupišu u tri radioaktivna niza (familije). To su uranijum-radijumski, uranijum-aktinijumski i torijumski niz. Rodonačelnici nizova (radioizotopi torijuma²³²Th i uranijuma²³⁸U i²³⁵U) imaju ekstremno duge periode poluraspada koji su nekoliko redova veličine duži od perioda poluraspada njihovih dugoživećih potomaka. To za posledicu ima uspostavljanje sekularne radioaktivne ravnoteže u nizovima pri kojoj je aktivnost svakog potomka jednaka aktivnosti rodonačelnika niza. Za svaki niz je karakteristična pojava grananje niza koja nastaje usled toga što neki radionuklidi imaju dvostruku mogućnost raspada sa odgovarajućom verovatnoćom (alfa-raspad i beta-raspad), pri čemu potomak može da nastane pomoću dva kanala raspada. Druga zajednička karakteristika radioaktivnih nizova je prisustvo izotopa inertnog gasa radona koji u većoj ili manjoj meri emanira iz matrice u kojoj se generiše. U prirodi su najzastupljenija dva izotopa radioaktivnog gasa radona: radon²²²Rn sa periodom poluraspada od 3.824 dana i toron²²⁰Rn sa periodom poluraspada od 55.6 s. ²²²Rn je prisutan u nizu uranijuma ²³⁸U i predstavlja najznačajniji radonov izotop.²²⁰Rn je prisutan u nizu torijuma²³²Th i uzima se u obzir u situacijama kada on ili njegovi potomci dostižu veće koncentracije kod merenja emanacije radona iz zemljišta i pronalaženja mesta ulaska radona. Gasoviti produkti u radioaktivnim nizovima uranijuma i torijuma: radon ²²²Rn i toron ²²⁰Rn kao inertni gasovi difuzijom dospevaju u vazduh ili vodu, napuštaju mesto generisanja i na taj način obrazuju značajne koncentracije u zatvorenim prostorima, što predstavlja veliki problem za niskofonske podzemne laboratorije i radijacioni rizik izloženog stanovništva. Narušavanje ravnoteže usled geohemijskih procesa se može dogoditi kod dugoživećih članova niza - torijuma²³⁰Th i radijuma²²⁶Ra u nizu uranijuma²³⁸U. U prirodnim geohemijskim procesima dolazi do raspadanja i ispiranja radijuma iz minerala i ruda urana, on se rastvara u vodi, migrira i gradi sekundarrne minerale, tako da često radijuma u uzorku ima manje ili više nego što odgovara njegovoj radioaktivnoj ravnoteži sa uranijumom.

Kada je radioaktivni niz u ravnoteži, aktivnosti svih radionuklida u nizu su iste, te se koncentracija predaka može odrediti merenjem intenziteta gama zračenja bilo kog potomka. Emanacija gasa radona iz uzoraka narušava ravnotežu nizova uranijuma i torijuma kod članova ²²²Rn i ²²⁰Rn. Držanjem uzoraka u hermetički zatvorenim sudovima u trajanju od oko 10 T_{1/2} (za ²²²Rn, ~ 40 dana; za toron ²²⁰Rn ~ 10 minuta) ova se ravnoteža može ponovo uspostaviti pre merenja.

Radon ²²²Rn se raspada alfa raspadom na kratkoživeće potomke: ²¹⁸Po (α raspad, T_{1/2}=3.10 min), ²¹⁴Pb (β/γ raspad, T_{1/2}=26.8 min), ²¹⁴Bi (β/γ raspad, T_{1/2}=19.9 min) i ²¹⁴Po (α raspad, T_{1/2}=164 μ s). Tokom alfa raspada nastaju radonovi potomci koji su pozitivno naelektrisani joni ili neutralni atomi koji se dalje grupišu u klastere malih dimenzija, 0.5 nm u dijametru približno. Oni rastu velikom brzinom do dimenzija od 0.5–5 nm kao rezultat pripajanja molekulima vode ili drugim molekulima u vazduhu u zavisnosti od trenutnih uslova u atmosferi i na taj način se obrazuju nepripojeni (slobodni) potomci radona u vidu ultrafinih aerosola ili klasteri difunduju kroz vazduh i stalnim međusobnim sudaranjem dolazi do njihovog spajanja i povećavanja, raspadanja ili taloženja na okolne površine. U zavisnosti od koncentracije jona u vazduhu i vlažnosti, nepripojeni radonovi potomci se delimično neutralizuju kroz rekombinaciju sa negativnim jonima ili se pripajaju česticama aerosola formirajući pripojene radonove potomke (dijametra reda veličine od 20 do 500 nm).

Zbog pojave taloženja aerosola na zidove i pod zatvorenih prostorija, zbog strujanja vazduha i ulaska svežeg vazduha, radioaktivna ravnoteža između potomaka i radona je samo delimično uspostavljena i izražava se preko faktora ravnoteže F koji predstavlja odnos ekvivalentnih ravnotežnih koncentracija aktivnosti potomaka i radona i čija vrednost se kreće između 0 i 1. Kada udišemo vazduh koji sadrži radon i njegove potomke, deo radonovih potomaka se taloži na zidove respiratornog trakta, gde se raspada i oslobađa energiju tkivu. Verovatnoća taloženja potomaka u ljudskim plućima je veća za nepripojene potomke nego za pripojene. Na taj način slobodna frakcija, iako je u normalnim uslovima ima znatno manje od pripojene u većoj meri doprinosi dozi.

Da bi se odredila doza za pluća koja potiče od inhalacije radona i potomaka bitno je definisati dozimetrijske veličine i odabrati odgovarajući model procene efektivne doze. U prvom poglavlju teze dat je detaljan pregled dozimetrijskih veličina za procenu radijacionog rizika od radona, pri čemu je data prednost AMAD konceptu koji se zasniva na određivanju medijane raspodele dijametara radioaktivnih aerosola u vazduhu - AMAD, u literaturi se sreće i oznaka AMD (engl. activity median diameter). Naglašen je značaj poznavanja slobodne frakcije radonovih potomaka f_{un} i faktora ravnoteže F između radona i potomaka za procenu doze koju stanovništvo primi od udisanja radona.

Izlaganje stanovništva jonizujućem zračenju u većoj meri potiče od izlaganja prirodnim radioaktivnim materijalima terestrijalnog porekla i udisanjem radona. Istraživački centri i međunarodne organizacije u velikoj meri se danas bave problemom NORM-a (Naturally Occurring Radioactive Materials) – radioaktivni materijali koji se javljaju u prirodi i TENORM-a (Technically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials) – prirodni radioaktivni materijali koji se nagomilavaju usled tehničko-tehnoloških procesa ili eksploatacijom u industriji i sl. Za ovakva merenja neophodno je raspolagati metodom koja je u mogućnosti da odredi niske

koncentracije aktivnosti uranijuma i torijuma i precizno utvrdi kontaminaciju ovim radionuklidima iznad uobičajenih nivoa.

Predmet istraživanja ove doktorske teze jeste razvijanje precizne metode za merenje koncentracija aktivnosti uranijuma i torijuma u prirodnim uzorcima na osnovu proučavanja ravnoteže u radioaktivnim nizovima ova dva radionuklida. Za razliku od komplikovanih i dugotrajnih metoda neutronske aktivacione analize i alfa-spektroskopije, promptna gama spektroskopija je nedestruktivan metod koji se može primeniti za određivanje niskih aktivnosti u kratkom periodu nakon uzorkovanja što ovo istraživanje dokazuje.

Niske aktivnosti u uzorcima iz životne sredine se mogu detektovati samo pomoću izuzetno osetljivih instrumenata, pa se za ispitivanje radioaktivnosti najčešće koriste poluprovodnički gama spektrometri koji omogućavaju identifikaciju i kvantitativno određivanje velikog broja radionuklida - gama emitera u raznovrsnim matricama. Visoka rezolucija poluprovodničkih detektora omogućava relativno brzu i preciznu identifikaciju radionuklida i određivanje njihove aktivnosti na principu konvertovanja upadne energije gama zračenja u električne signale različite visine. Danas gama spektrometrija predstavlja najrasprostranjeniju nuklernu analitičku tehniku u raznim oblastima istraživanja: monitoring nuklearnih postrojenja, medicinska fizika, nuklearna medicina, radioekologija, ispitivanje materijala, geologija, industrija, poljoprivreda, biofizika i sl. U drugom poglavlju disertacije su date prednosti, ali i slabe tačke ove metode, opisana je merna procedura, šta sve čini gama-spektrometrijske sisteme, na koji način se dobija gama-spektar i koje su njegove komponente. Ujedno je dat i prikaz gama-spektrometrijskih sistema u Laboratoriji za nuklearnu fiziku, na Departmanu za fiziku, Prirodnomatematičkog fakulteta u Novom Sadu na kojima su izvršena merenja prikazana u okviru ove teze.

U trećem poglavlju teze detaljno je opisana problematika koja prati gama-spektrometrijsku analizu sadržaja uranijuma ²³⁸U u uzorcima iz životne sredine. Prikazana je i obrazložena promptna gama-spektrometrijska metoda za određivanje koncentracije aktivnosti uranijuma²³⁸U razvijena u laboratoriji na osnovu intenziteta gama-linija uranijumovih potomak a torijuma²³⁴Th i protoaktinijuma ²³⁴Pa. Određivanje koncentracije aktivnosti osiromašenog uranijuma u zemljištu je kompleksan zadatak, osim ako se radi o vrlo velikim koncentracijama aktivnosti. Međutim, određivanje srednjih i malih koncentracija je neophodno ako se želi pratiti migracija radionuklida kroz tlo i/ili ako treba pratiti efekte dekontaminacije. U okviru teze dat je prikaz metode za određivanje malih koncentracija aktivnosti uranijuma ²³⁸U koja potiče od kontaminacije osiromašenim uranijumom. Ovom metodom izvršen je određen broj merenja kontaminiranog zemljišta i pokazano je da je granica detekcije osiromašenog uranijuma ovom metodom i sa opremom kojom raspolaže Laboratorija oko 10 Bq/kg. Pored toga analiziranui su rezultati novijih istraživanja na praćenju radioaktivnosti poljoprivrednog i nepoljoprivrednog zemljišta na području opštine Novi Sad i na 50 lokacija na teritoriji AP Vojvodine. Dobijeni faktori korelacije potvrđuju ranije pretpostavke o narušenoj ravnoteži uranijuma i radijuma ²³⁸U/²²⁶Ra u uzorcima zemljišta koje su i predstavljale polaznu osnovu za opisana naučna istraživanja.

Detekcija radona i torona, kao i određivanje faktora ravnoteže sa njihovim kratkoživećim potomcima u vazduhu je neophodno za gama spektrometrijska istraživanja prirodne radioaktivnosti. Laboratorija se već dugi niz godina bavi ispitivanjem radona i u poglavlju 4 su pored opisa korišćenih pasivnih i aktivnih metoda, dati i rezultati dosadašnjih merenja koncentracije aktivnosti radona u vazduhu zatvorenih prostorija, kao i rezultati istraživanja

emanacije radona iz zemljišta u kojima je autor teze aktivno učestvovao. Naročito smo ponosni na prve rezultate u mapiranju radona u Srbiji – radonsku mapu Vojvodine sa 3000 merenja koncentracije aktivnosti radona trag detektorima CR39 po standardima evropske radonske mape. Međutim, da bi se precizno i adekvatno procenila efektivna doza od udisanja radona na osnovu ovako bogate sistematike merenja neophodno je poznavanje faktora ravnoteže između radona i njegovih kratkoživećih potomaka u vazduhu.

Prema preporukama ICRP (Međunarodna komisija za zaštitu od zračenja) za faktor ravnoteže može se pretpostaviti vrednost 0.4, međutim pošto ovaj faktor zavisi u velikoj meri od uslova sredine (jačina ventilacije, vlažnost i sl.) neophodno ga je odrediti pri svakom merenju radona. U literaturi se najčešće sreću metode za merenje faktora ravnoteže koje se zasnivaju na detekciji ukupne alfa aktivnosti i koje unose velike neodređenosti i greške i zahtevaju potvrdu i drugih egzaktnijih metoda. U petom poglavlju ove disertacije razvijen je egzaktni metod merenja radonske ravnoteže u vazduhu koji se zasniva na gamaspektrometrijskom određivanju koncentracije aktivnosti radona u vazduhu. U okviru metode su izvedene matematičke formule za izračunavanje početnih koncentracija potomaka ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi u vazduhu na početku usisavanja na osnovu detektovanog odbroja postradonskih gama linija sa uzorka filter papira. Ovakav model koji u sebi sadrži korekcije na radioaktivni raspad potomaka tokom usisavanja, hlađenja i merenja može naći primenu i u drugim nuklearnim analizama gde period poluraspada izvora ima isti red veličine kao raspoloživo vreme snimanja.

U tezi su analizirani rezultati ispitivanja radioaktivnosti u okviru projekata finansiranih od strane Pokrajinskog sekretarijata za zaštitu životne sredine i održivi razvoj AP Vojvodine i Gradske uprave za zaštitu životne sredine grada Novog Sada, kao i rezultati naučnih istraživanja u okviru projekata OI 171002 Nuklearne metode istraživanja retkih događaja i kosmičkog zračenja i III 43002 Biosensing tehnologije i globalni sistem za kontinualna istraživanja i integrisano upravljanje ekosistemima kod Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije. Ovom prilikom se autor teze zahvaljuje na ukazanom poverenju i finansijskoj podršci.

I na kraju autor želi da se zahvali na nesebičnoj podršci i pomoći prilikom izrade ove disertacije svim članovima Nuklearne grupe iz Novog Sada, a naročito mentoru prof.dr Ištvanu Bikitu i ko-mentoru prof.dr Dušanu Mrđi.

Novi Sad, 01.08.2013.

mr Sofija Forkapić

GLAVA 1. Radioaktivni nizovi uranijuma i torijuma

1.1 Prirodna radioaktivnost

Radioaktivni elementi (radionuklidi) se u prirodi nalaze u vazduhu, vodi i zemljištu i sastavni su delovi stena, mora i okeana, građevinskih materijala. Ne postoji mesto na Zemlji gde nema prirodne radioaktivnost. Poznato je preko 1500 različitih radionuklida koji se mogu grupisati u dve kategorije:

- > prirodni radionuklidi, koji po poreklu mogu biti:
 - primordijalni (prvobitni) od pre nastanka Zemlje i
 - kosmogeni nastali kao rezultat interakcije kosmičkih zraka i
- > antropogeni (proizvedeni) radionuklidi nastali kao produkt ljudske aktivnosti.

Pojava prirodne radioaktivnosti vezana je za proces sinteze jezgara. Prva jezgra, i to uglavnom ona najlakša, formirana su pre nekoliko milijardi godina sa nastankom Svemira, a proces nukleonsinteze se od tog momenta kontinuirano odvija u središtima zvezda. Tom prilikom, osim poznatih stabilnih jezgara, formira se i veliki broj nestabilnih. Geološka starost planete Zemlje je dovoljno duga tako da se najveći deo nestabilnih jezgara koji je ušao u njen sastav prilikom formiranja Sunčevog sistema već raspao. Do današnjih dana, preživeli su neki dugoživeći izotopi, sa periodom poluraspada većim od 500 miliona godina, kao na primer kalijum ⁴⁰K, uranijum ²³⁵U, uranijum ²³⁸U itd.

1.1.1 Primordijalni radionuklidi

Primordijalni radionuklidi su prirodni Zemaljski - terestrijalni radionuklidi koji predstavljaju najznačajniji izvor jonizujućeg zračenja u životnoj sredini. Samo su radionuklidi sa periodom poluraspada uporedivim sa starošću Zemlje (10⁵-10¹⁶ godina) i njihovi produkti raspada u značajnoj meri zastupljeni u materijalima u životnoj sredini (stenama, zemljištu, vodi, ljudskom telu). Spoljašnje ozračivanje stanovništva dominatno potiče od gama zračenja nastalog raspadima u radioaktivnim nizovima uranijuma ²³⁸U i torijuma ²³²Th, kao i od kalijuma ⁴⁰K [1]. Ovi radionuklidi doprinose i unutrašnjem izlaganju kada ingestijom ili inhalacijom dospeju u ljudski organizam i ozračavaju različite organe alfa i beta česticama, kao i gama zračenjem. Ostali terestrijalni radionuklidi zastupljeni su u malim količinama i ne doprinose u velikoj meri dozi stanovništva. U ovu grupu spadaju: niz uranijuma ²³⁵U, vanadijum ⁵⁰V, rubidijum ⁸⁷Rb, kadmijum ¹¹³Cd, indijum ¹¹⁵In, telur ¹²³Te, lantan ¹³⁸La, cerijum ¹⁴²Ce, neodimijum ¹⁴⁴Nd,

samarijum ¹⁴⁷Sm, gadolinijum ¹⁵²Gd, hafnijum ¹⁷⁴Hf, lutecijum ¹⁷⁶Lu, renijum ¹⁸⁷Re i platina ¹⁹⁰Pt i ¹⁹²Pt.

U Tabeli 1.1 date su osobine nekih od primordijalnih radionuklida. Od radionuklida koji ne pripadaju radioaktivnim nizovima. je najznačajniji kalijum ⁴⁰K, koga u prirodnom kalijumu ima samo 0.0117%, ali pošto je kalijum kao element veoma zastupljen u Zemljinoj kori, prilikom gama spektrometrijskih merenja, neizbežno se detektuje i kalijumova aktivnost koja potiče od mogućeg prisustva kalijuma u uzorku koji se meri, ili od kalijuma koji se nalazi u objektima koji okružuju detektor.

Pre 300 miliona godina koncentracija kalijuma ⁴⁰K je bila znatno veća. Za prebiotičke procese na Zemlji ⁴⁰K je bio posebno značajan in situ izvor u celoj zapremini okeana, koji je i na najvećim okeanskim dubinama dovodio do radiolize vode odnosno do javljanja slobodnih radikala (H⁺, OH⁻ i e_{aq}). Kompjutersko modeliranje radiolize vode u okeanu (pre 3800 miliona godina) ukazuje na nastajanje značajnih količina vodonika i kiseonika pre pojave fotosinteze i mikroorganizama. Ukupno u masi vode okeana za 100 miliona godina procenjeno je da je formirano $3x10^{19}$ g kiseonika O₂ (atmosfera danas: $1.2x10^{21}$ g O₂). To je bio preduslov za formiranje prvih organskih molekula čije je umnožavanje dovelo do stvaranja protoplazme sposobne za samoreprodukciju, te u vodi počinje i život na Zemlji. ⁴⁰K je jedan od glavnih radionuklida magme, neizbežna komponenta u dugom lancu ishrane (zemljište-biljke-životinje-čovek), te prosečan čovek unese hranom oko 44000 Bq ⁴⁰K godišnje [2].

Zastupljenost primordijalnih radionuklida u životnoj sredini nije ravnomerna. Postoje oblasti u svetu – takozvane "vruće tačke" koje imaju povišen sadržaj ovih radionuklida i samim tim povećane doze jonizujućeg zračenja u vazduhu. Neke od tih oblasti su Guarapari u Brazilu, Yangiang u Kini, oblasti Kerala i Madras u Indiji, delta Nila u Egiptu (usled povišenog sadržaja torijuma u naslagama monacitnog peska), Mineas Gerais u Brazilu, ostrvo Niue u Pacifiku i delovi Italije (zemljište vulkanskog porekla), centralni masiv u Francuskoj (granitne stene) i oblast na jugozapadu ove države (visok sadržaj minerala uranijuma u zemljištu). Oblasti Ramsar i Mahallat u Iranu su poznate po depoziciji ²²⁶Ra iz podzemnih izvora tople vode [1].

U primarnim geohemijskim sredinama obrazuju se različiti tipovi magmatskih i metamorfnih stena, ruda i duboke podzemne vode u čiji sastav ulaze radionuklidi. U magmatskim stenama sadržaj i raspodela radionuklida zavise od geohemijskih osobina elemenata i radijusa njihovih jona koji utiču na ponašanje elementa tokom kristalizacije i diferencijacije magme Tako sadržaj radionuklida ⁴⁰K, koji je jedan od glavnih elemenata magme, izrazito nizak u ultrabazičnim stenama (0,03%), viši je u bazičnim stenama i najviši u kiselim stenama (graniti, rioliti) u kojima su K-minerali (liskuni i K-feldspati) glavni petrogeni minerali. Sadržaji ⁸⁷Rb pokazuju isti trend raspodele, pošto rubidijum kao mikroelement zbog velikog radijusa jona može da zamenjuje samo kalijum u rešeci petrogenih minerala [3].

Slične trendove pojavljivanja u magmatskim stenama pokazuju i drugi značajni radionuklidi - uranijum i torijum, ali i manje zastupljen lantan ¹³⁸La. Kao joni velikih naelektrisanja i radijusa, ne mogu da zamenjuju glavne elemente u mineralima stena i značajno se koncentrišu u nekim akcesornim mineralima (cirkon, monacit, apatit) ili su vezani za vanstrukturne pozicije. Delom torijum i naročito uranijum prelaze u hidrotermalne rastvore i obrazuju sopstvena rudna ležišta ili se koncentrišu u rudama drugih metala.

Radionuklid	Simbol	Period poluraspada T _{1/2}	Dominantni raspad
Kalijum 40	⁴⁰ K	1.28x10 ⁹ god	Beta (89.3%), EC ¹ (10.7%)
Rubidijum 87	⁸⁷ Rb	$4.75 \times 10^{10} \text{ god}$	Beta (100%)
Lantan 138	¹³⁸ La	1.05×10^{11} god	Beta (33.6%), EC (66.4%)
Samarijum 147	¹⁴⁷ Sm	$1.06 \text{x} 10^{11} \text{ god}$	Alfa (100%)
Lutecijum 176	¹⁷⁶ Lu	$3.73 \times 10^{10} \text{ god}$	Beta (100%)
Niz uranijuma ²³⁸ U:			
Uranijum 238	²³⁸ U	$4.47 \mathrm{x} 10^9 \mathrm{god}$	Alfa (100%)
Torijum 234	234Th	24.10 dana	Beta (100%)
Protoaktinijum 234m	^{234m} Pa	1.17 min	Beta (99.8%), IT ²
Uranijum 234	²³⁴ U	2.45×10^5 god	Alfa (100%)
Torijum 230	230Th	$7.54 \text{x} 10^4 \text{ god}$	Alfa (100%)
Radijum 226	²²⁶ Ra	1600 god	Alfa (100%)
Radon 222	²²² Rn	3.824 dana	Alfa (100%)
Polonijum 218	²¹⁸ Po	3.05 min	Alfa (99.98%), Beta(0.02%)
Olovo 214	²¹⁴ Pb	26.8 min	Beta(100%)
Bizmut 214	²¹⁴ Bi	19.9 min	Alfa (0.02%), Beta(99.98%)
Polonijum 214	²¹⁴ Po	164 µs	Alfa (100%)
Olovo 210	²¹⁰ Pb	22.3 god	Beta (100%)
Bizmut 210	²¹⁰ Bi	5.013 dana	Beta (100%)
Polonijum 210	²¹⁰ Po	138.4 dana	Alfa (100%)
Olovo 206	²⁰⁶ Pb	stabilan	
Niz torijum ²³² Th:			
Torijum 232	²³² Th	1.405x10 ¹⁰ god	Alfa (100%)
Radijum 228	²²⁸ Ra	5.75 god	Beta(100%)
Aktinijum 228	²²⁸ Ac	6.15 h	Beta(100%)
Torijum 228	228Th	1.912 god	Alfa(100%)
Radijum 224	²²⁴ Ra	3.66 dana	Alfa(100%)
Radon 220	²²⁰ Rn	55.6 s	Alfa(100%)
Polonijum 216	²¹⁶ Po	0.145 s	Alfa(100%)
Olovo 212	²¹² Pb	10.64 h	Beta(100%)
Bizmut 212	²¹² Bi	60.55 min	Alfa (36%), beta (64%)
Polonijum 212	²¹² Po	0.299 µs	Alfa(100%)
Talijum 208	²⁰⁸ Tl	3.053 min	Beta(100%)
Olovo 208	²⁰⁸ Pb	stabilan	
Niz uranijuma ²³⁵ U	1 335		
Uranijum 235	²³⁵ U	7.038 x 10° god	Alfa (100%)
Torijum 231	²³¹ Th	25.52 h	Beta(100%)
Protoaktinijum 231	²³¹ Pa	32760 god	Alfa (100%)
Aktinijum 227	²²⁷ Ac	21.77 god	Alfa (1.4%), beta (98.6%)
Torijum 227	22711	18.72 dana	Alfa (100%)
Francijum 223	²²³ Fr	21.8 min	Beta(100%)
Radijum 223	219-	11.44 dana	Alfa (100%)
Radon 219	²¹⁷ Rn	3.96 s	Alfa (100%)
Polonijum 215	²¹³ Po	1.781 ms	Alfa (100%)
Olovo 211	211Pb	36.1 min	Beta(100%)
Bizmut 211	2017	2.14 min	Alfa (99.7%), beta (0.3%)
Talijum 207	207 TI	4.77 min	Beta(100%)
Olovo 207	2 °'Pb	stabilan	

Tabela 1.1 Fizičke karakteristike primordijalnih radionuklida [1]

¹ EC – zahvat elektrona,

² IT – interni prelaz

Poznato je oko 160 minerala u čiji sastav u većoj količini ulazi uranijum i oko 100 koje sadrže torijum. Više od 30% od ovog ukupnog broja minerala nisu sopstveni uranijumski ni torijumski nego minerali koji uran i torijum sadrže samo kao primese.

Primarni minerali urana su njegovi oksidi i složeni bezvodni oksidi koji sadrže izomorfne primese titana, gvožđa i torijuma (uranit, uranijumove smole). Sekundarni minerali uranijuma su sulfati, karbonati, fosfati, arsenati, vanadati, molibdati, silikati uranila i hidroksidi uranijuma (karnotit, kofinit, autunit). Minerali koji samo sadrže uranijum su po sastavu organska jedinjenja, složeni oksidi titana, niobijuma, torijuma i retkih zemalja, fosfati i silikati [4].

Torijumovi minerali i minerali koji sadrže torijum su oksidi i silikati (torit), a takođe i složeni oksidi i fosfati titana, talijuma i retkih zemalja (monaziti). Svi torijumovi minerali u većoj ili manjoj meri sadrže i uranijum. Osim minerala, od industrijskog interesa mogu biti i koncentracije uranijuma i torijuma u nalazištima uglja (lignit, asfaltiti), nafte i fosfatne rudače, nastale kao rezultat adsorpcije uranijuma na organskim materijalima i fosforitima, a takođe i zlatonosni konglomerati koji sadrže pirit F_2S_2 i karnotitni peščanici.

radionuklid	bazalt	sieniti	granit	krečnjak	peščar
⁴⁰ K [Bq/kg]	210	1400	1290	89	370
²³² Th [Bq/kg]	6.5	69.2	87.5	7	11
²³⁸ U [Bq/kg]	5.3	102.0	59.7	28	19

Tabela 1.2 Karakteristične koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida u nekim stenama [5]

Osim u litosferi, uranijum i torijum su prisutni i u hidrosferi i atmosferi, i u svim živim organizmima. Površinske i podzemne vode, bile su kroz geološku istoriju, a i danas su glavni transporteri uranijuma koji usmeravaju njegovu migraciju. Sadržaj uranijuma u podzemnim vodama značajno varira (5 $10^{-8} - 2,7 10^{-3}$ g/l) što je uslovljeno raznim faktorima. Jedan od njih je karakter soli i gasova rastvorenih u vodi. Kisele vode i vode bogate kiseonikom prevodiće nerastvorni U⁴⁺ jon u rastvorni U⁶⁺ i time povećati migracionu sposobnost uranijuma, ali i njegovu koncentraciju u toj vodi. Obrnuto, metan rastvoren u vodi uz prisustvo SO₄²⁻ jona ili samo odsustvo kiseonika izazvaće redukciju U⁶⁺ do U⁴⁺ jona čija su jedinjenja slabo rastvorna i lako se hidrolizuju. Na česticama gline i organskih koloida ta uranijumova jedinjenja će se adsorbovati, u fosfatima izomorfno zameniti kalcijum, a u prisustvu hidrata Fe, Al, Mn i dr. istaložiti. Sve ovo ima za posledicu odstranjivanje uranijuma iz vodenih tokova, odnosno smanjenje sadržaja uranijuma u njima.

Međutim, pri datim uslovima, neki od potomaka uranijuma u radioaktivnom nizu, može se ponašati drugačije. Radijum npr., kao glavni produkt raspada uranijumovog niza gradi sa anjonima Cl⁻, Br⁻, J⁻, NO₃⁻ u vodi lako rastvorljive, a sa anjonima F⁻, SO₄²⁻, CO₃²⁻ i PO₃³⁻ teško rastvorljive soli. Ako u konkretnom slučaju egzistiraju velike razlike u rastvorljivosti formiranih uranijumovih i radijumovih jedinjenja, odnosno bitno je različita sposobnost prelaska uranijuma i radijuma iz rastvora čime dolazi do ozbiljnog narušavanja radioaktivne ravnoteže među njima. Ovo je primer da fizičko-hemijska svojstva radioaktivnih elemenata treba posmatrati i u funkciji uticaja na radioaktivnu ravnotežu.

Uranijum je nađen i u živim organizmima pa se stoga smatra i bioelementom. Ispitivanja su pokazala da je nakupljanje uranijuma različito po organima, što uranijumu daje dodatni značaj sa aspekta zdravstvene zaštite i zaštite životne sredine.

Zaključno, razmatrajući rasprostranjenost radioaktivnih elemenata u prirodi, može se reći da je koncentracija prirodnih radionuklida u Zemljinoj kori veoma mala. Najrasprostranjeniji među njima su uranijum i torijum. Koncentracija uranijuma i torijuma u Zemljinoj kori se kreće u opsegu od 1.1–10 ppm [6] za uranijum i 10 ppm za torijum [7]. Ove vrednosti odgovaraju koncentracijama aktivnosti u opsegu od 13.5 – 123 Bq/kg za ²³⁸U i 39.4 Bq/kg za ²³²Th. Raspodela uranijuma i torijuma u geosferi je difuzna, tj. ne postoje specifična ležišta ruda ovih radioaktivnih elemenata.

1.1.2 Kosmogeni radionuklidi

Značajan izvor prirodne radijacije je i kosmičko zračenje. Primarno kosmičko zračenje je galaktičkog i solarnog porekla, a sastoji se naelektrisanih čestica veoma visoke energije (0,01 – 10 GeV). Do zemljine površine ono veoma retko dospeva pošto nestaje u interakcijama u atmosferi u kojima se stvara sekundarno zračenje i kosmogeni radionuklidi. U gornjim slojevima atmosfere nuklearnim reakcijama kosmičkog zračenja sa jezgrima azota i kiseonika dolazi do stvaranja nekolicine radioaktivnih jezgara, kao što su ugljenik ¹⁴C i berilijum ⁷Be. Nakon toga dolazi do njihovog ravnomernog raspoređivanja putem atmosferskih transportnih procesa, te na taj način i oni daju svoj doprinos ukupnoj prirodnoj radioaktivnosti. U kosmogene radionuklide spadaju i berilijum ¹⁰Be, aluminijum ²⁶Al, hlor ³⁶Cl, kripton ⁸⁰Kr, ugljenik ¹⁴C, silicijum ³²Si, argon ³⁹Ar, natrijum ²²Na, sumpor ³⁵S, argon ³⁷Ar, fosfor ³³P, ³²P, magnezijum ³⁸Mg, natrijum ²⁴Na, sumpor ³⁸S, silicijum ³¹Si, fluor ¹⁸F i hlor ³⁹Cl, ³⁸Cl, ^{34m}Cl. U Tabeli 1.3 date su osobine nekih kosmogenih nuklida.

Radionuklid	Simbol	T _{1/2}	Dominantan raspad
Ugljenik 14	¹⁴ C	5730 god	Beta (100%)
Vodonik 3 (Tricijum)	³ H	12.33 god	Beta (100%)
Berilijum 7	⁷ Be	53.29 dana	EC (100%)
Berilijum 10	¹⁰ Be	$1.51 \times 10^{6} \text{ god}$	Beta (100%)
Natrijum 22	²² Na	2.602 god	EC (100%)
Aluminijum 26	²⁶ Al	7.4×10^5 god	EC (100%)
Silicijum 32	³² Si	172 god	Beta (100%)
Fosfor 32	³² P	14.26 dana	Beta (100%)
Fosfor 33	³³ P	25.34 dana	Beta (100%)
Sumpor 35	³⁵ S	87.51 dana	Beta (100%)
Hlor 36	³⁶ Cl	3.01×10^5	EC (1.9%), beta (98.1%)
Argon 37	³⁷ Ar	35.04 dana	EC (100%)
Argon 39	³⁹ Ar	269 god	Beta (100%)
Kripton 81	⁸¹ Kr	2.29×10^5 god	EC (100%)

Tabela 1.3. Fizičke osobine nekih kosmogenih radionuklida [1]

Berilijum ⁷Be je kosmogeni radionuklid koji nastaje interakcijom kosmičkog zračenja sa kiseonikom i azotom u atmosferi. Najčešće je u obliku BeO ili Be(OH)₂ vezan za atmosferske aerosole i u njima se kreće kroz različite slojeve atmosfere. Oko 70% ⁷Be se proizvodi u stratosferi, a ostatak u troposferi gde se zadržava oko šest nedelja. Vreme poluraspada od 53.3 dana ograničava korišćenje ⁷Be kao trasera pri izučavanju kretanja vazdušnih masa kroz atmosferu. Koncentracija ⁷Be u prizemnom sloju atmosfere varira u zavisnosti od godišnjih doba, strato-troposferskih izmena vazdušnih masa, horizontalnog transfera i efekta spiranja padavinama.

1.1.3 Proizvedena radioaktivnost

Osim prirodnih radioizotopa, u atmosferi, vodi i tlu se mogu naći i neki radionuklidi koji su nastali nakon ljudskih (tehnoloških) aktivnosti. Najbrojnija grupa ovih veštački stvorenih radioizotopa su fisioni produkti koji nastaju nakon cepanja teških jezgara, najčešće uranijuma i torijuma. Fisioni procesi su osnovni izvor energije, kako nuklearnog oružja, tako i procesa koji se odvijaju u reaktorima nuklearnih elektrana. To znači da se putem nadzemnih proba nuklearnog oružja ili tokom havarija u nuklearnim elektranama oslobađa izvesna količina fisionih fragmenata. Najveći broj ovih radionuklida imaju veoma kratak period poluraspada i predstavljaju realnu opasnost po ljudsku populaciju neposredno nakon probe nuklearnog naoružanja ili havarije. Manji broj ovih radionuklida imaju velik period poluraspada i putem vazdušnih i vodenih strujanja se transportuju na velike razdaljine da bi se konačno istaložili. Ovi se radioizotopi mogu naći i u zemljištu. Nuklearne elektrane u određenim okolnostima mogu ispuštati izvesnu količinu radionuklida koji nisu fisioni fragmenti. Naime visok fluks neutrona u reaktoru može dovesti do aktiviranja mekih materijala od kojih su načinjeni pojedini delovi reaktora ili sistema njegovog hlađenja. Ovako nastali izotopi se mogu naći u životnoj sredini, najčešće u vodotokovima i sedimentu.

Nuklid	Simbol	T _{1/2}	Izvor		
Tricijum ³ H		12.3 god	pri testiranju oružja i u fisionim reaktorima; pri proizvodnji nuklearnog oružja		
Jod 131	¹³¹ I	8.04 dana	fisioni produkt pri testiranju oružja i u fisionim reaktorima, koristi se u medicinskoj terapiji		
Jod 129	¹²⁹ I	$1.57 \ge 10^7 \text{ god}$	fisioni produkt pri testiranju oružja i u fisionin reaktorima		
Cezijum 137	¹³⁷ Cs	30.17 god	fisioni produkt pri testiranju oružja i u fisionim reaktorima		
Stroncijum 90	⁹⁰ Sr	28.78 god	fisioni produkt pri testiranju oružja i u fisionim reaktorima		
Tehnecijum 99	⁹⁹ Tc	$2.11 \ge 10^5 \text{ god}$	nastaje raspadom ⁹⁹ Mo, koristi se u medicinskoj dijagnostici		
Plutonijum 239 ²³⁹ Pu 2.41 x 10 ⁴ god		$2.41 \text{ x } 10^4 \text{ god}$	nastaje pri bombardovanju 238 U neutronima (238 U + n> 239 U> 239 Np + β > 239 Pu+ β)		

Tabela 1.4 Fizičke karakteristike nekih veštački proizvedenih radionuklida

Na osnovu preporuka IAEA formirana je lista dugoživećih fisionih produkata ili radioizotopa nastalih aktivacijom koji bi mogli predstavljati dugoročni izvor zračenja u životnoj sredini. Uobičajeno je da se prilikom kontrole uzoraka vode ili zemljišta na ove izotope posebno obrati pažnja. Radi se o sledećim izotopima: kobalt ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, selenijum ⁷⁵Se, cirkonijum ⁹⁵Zr, rutenijum ¹⁰³Ru, rodijum ¹⁰⁶Rh, srebro ^{110m}Ag, antimon ¹²⁴Sb, ¹²⁵Sb, cezijum ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, cerijum ¹⁴¹Ce, ¹⁴⁴Ce i terbijum ¹⁶⁰Tb.



Slika 1.1 Depozicija ¹³⁷Cs nakon havarije nuklearne elektrane u Fukushimi, 2011. [8]

Pored prirodnih izvora jonizujućeg zračenja od 60-tih godina ovog veka značajan problem predstavljaju proizvedeni (veštački) izvori jonizujućeg zračenja. Prema podacima UNSCEAR-a iz 1982. godine usled probnih nuklearnih eksplozija u stratosferu je ispušteno 9.6 10¹⁷ Bq, što je nakon stratosferskog taloženja izazvalo globalnu kontaminaciju biosfere radionuklidima kao što su cezijum ¹³⁷Cs i stroncijum ⁹⁰Sr. Iako su koncentracije navedenih fisionih produkata u biosferi do 80-tih godina već postale veoma niske javio se novi problem - havarija nuklearnog objekta u Černobilu pri kojoj je ispušteno 3.8 10¹⁶Bq cezijuma ¹³⁷Cs, od čega je 10% dospelo na teritoriju bivše Jugoslavije. Tako u drugoj polovini 1986. godine na ovim prostorima mogla da se registruje, u zemljištu Plandišta koncentracija aktivnosti od 978 Bq/kg. Aktivnost ¹³⁷Cs se još uvek detektuju u tragovima u mnogim medijumima u ekosistemu Vojvodine. Takođe smo svedoci najnovije havarije nuklearne elektrane u Fukushimi u Japanu u martu 2011. godine usled jakog zemljotresa i cunamija i nepredviđenog otkazivanja rezervnog sistema hlađenja. Ova havarija i ispuštanje značajne količine veštačkih radionuklida cezijuma ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs i joda ¹³¹I u atmosferu je imalo posledice u globalnim razmerama, jer se za nekoliko nedelja oblak sa radioaktivnim česticama raširio usled atmosferskih strujanja po čitavoj severnoj

hemisferi. Naša Laboratorija je bila uključena u vanredni monitoring kojim su svakodnevno praćene koncentracije aktivnosti proizvedenih radionuklida u aerosolu, padavinama, uzorcima hrane i svežeg ovčijeg i kravljeg mleka dobijenog od stoke sa direktne ispaše. Detektovano je prisustvo u tragovima radionuklida joda ¹³¹I (3 x 10⁻⁴ Bq/m³) [9] u uzorku aerosola sa lokaliteta na teritoriji AP Vojvodine i niska koncentraciju aktivnosti ¹³¹I u uzorku kišnice prikupljene tokom 28.3.2011. godine na Hidrometeorološkoj stanici Rimski šančevi.

1.2 Radioaktivni nizovi uranijuma i torijuma

Većina prirodnih radionuklida koji postoje na Zemlji (rednog broj Z>82) se mogu grupisati u tri radioaktivna niza (familije). To su uranijum-radijumski, uranijum-aktinijumski i torijumski niz. Od izotopa praroditelja (rodonačelnika nizova): uranijuma ²³⁵U, uranijuma ²³⁸U i torijuma ²³²Th, koji se zbog svog dugog perioda poluraspada još uvek nalaze u prirodi, sukcesivnim radioaktivnim raspadima nastaju radioaktivni elementi – potomci. Poslednji član niza je jedan od stabilnih izotopa olova Osim ova tri, u laboratorijskim uslovima, je putem nuklearnih reakcija stvoren i četvrti, neptunijumski niz. Nizovi se među sobom razlikuju po izgradnji masenog broja. Osnovni procesi transformacije jezgara kod ovih nizova su alfa i beta raspad.

Prva od tri niza – uranijum-radijumski niz (ili niz uranijuma 238 U) – počinje izotopom 238 U a završava se stabilnim izotopom olova 206 Pb. Maseni brojevi svih članova ovog niza predstavljeni su formulom (4n+2), gde je n ceo pozitivan broj između 51-59.

Drugi niz naziva se niz torijuma. Počinje izotopom ²³²Th, a završava se stabilnim izotopom olova ²⁰⁸Pb. Maseni brojevi članova ovog niza karakterišu se formulom 4n, gde je n ceo broj između 52-58.

Treći niz naziva se uranijum-aktinijumski niz (ili niz aktinijuma). Počinje izotopom ²³⁵U, a završava se stabilnim izotopom olova ²⁰⁷Pb. Karakteriše se masenim brojevima 4n+3, gde je n između 51-58.

Rodonačelnici nizova (radioizotopi torijuma ²³²Th i uranijuma²³⁸U i ²³⁵U) imaju ekstremno duge periode poluraspada koji su nekoliko redova veličine duži od perioda poluraspada onih njihovih potomaka sa najdužim periodima poluraspada. To za posledicu ima uspostavljanje **sekularne radioaktivne ravnoteže** u nizovima pri kojoj je aktivnost svakog potomka jednaka aktivnosti rodonačelnika niza. Međutim, za svaki niz je karakteristična pojava grananje niza koja nastaje usled toga što neki radionuklidi imaju dvostruku mogućnost raspada sa odgovarajućom verovatnoćom (β -raspad i α -raspad), pri čemu potomak može da nastane pomoću dva kanala raspada. Aktivnost nastalog potomka je tada konstantan deo aktivnosti rodonačelnika niza i zavisi od verovatnoće raspada njegovog pretka po kanalu raspada u kojem posmatrani potomak nastaje.

Na Slikama 1.2 i 1.3 su šematski prikazani radioaktivni nizovi uranijuma i torijuma sa sukcesivnim raspadima nestabilnih radionuklida uz prikaz najverovatnijih grana, perioda poluraspada izotopa i tipa transormacije (raspada) [10].



Slika 1.2 Šema uranijum-radijumskog niza [10] – simboli α i β označavaju dominantne alfa i beta raspade respektivno, data vremena su vremena poluraspada i oznaka * obeležava izotope značajne gama emitere



Slika 1.3 Šema torijumskog niza [10] – simboli α i β označavaju dominantne alfa i beta raspade respektivno, data vremena su vremena poluraspada i oznaka * obeležava izotope značajne gama emitere

Odnos ili verovatnoća grananja (%) se može izraziti na sledeći način. Ako se verovatnoća za emisiju α -čestice obeleži sa λ_{α} , a za emisiju β -čestice sa λ_{β} , tada je totalna verovatnoća raspada jezgra u jedinici vremena:

$$\lambda = \lambda_{\alpha} + \lambda_{\beta} \tag{1.1}$$

Aktivnost ili brzina raspada predstavlja se tada na sledeći način

$$\frac{dN}{dt} = -(\lambda_{\alpha} + \lambda_{\beta})N \tag{1.2}$$

Odnos određenog radioaktivnog raspada prema ukupnom radioaktivnom raspadu naziva se odnos grananja i dat je odnosom konstanti radioaktivnog raspada, za konkretan slučaj α -raspada: $\frac{\lambda_{\alpha}}{\lambda_{\alpha} + \lambda_{\beta}}$. Isti se odnos može uspostaviti i za β -raspad.

Pojava grananja je zajednička za sva tri niza. Druga zajednička karakteristika radioaktivnih nizova je prisustvo izotopa inertnog gasa radona koji u većoj ili manjoj meri emanira iz matrice u kojoj se generiše. U prirodi su prisutna tri izotopa radioaktivnog gasa radona:

- ²²²Rn sa periodom poluraspada od 3.824 dana prisutan je u nizu uranijuma ²³⁸U i predstavlja najznačajniji radonov izotop, u daljem izlaganju pod terminom "radon" podrazumeva se upravo ovaj izotop,
- ²²⁰Rn sa periodom poluraspada od 55.6 s prisutan je u nizu torijuma ²³²Th i za njega se koristi specijalni naziv Toron, uzima se u obzir u situacijama kada on ili njegovi potomci dostižu veće koncentracije kod merenja emanacije radona iz zemljišta i pronalaženja mesta ulaska radona i
- ²¹⁹Rn sa periodom poluraspada od 3.92 s prisutan je u nizu uranijuma ²³⁵U i naziva se Aktinon, vrlo malo je zastupljen u prirodi (zbog malog sadržaja izotopa ²³⁵U) i njegov doprinos u ozračivanju ljudi je neznatan.

U prirodi je najzastupljeniji izotop radona ²²²Rn, potomak radijuma ²²⁶Ra. Usled toga što je ovo inertni gas, on napušta mesto generisanja (stena, zemljište, voda) i difuzijom dospeva u vazduh ili se rastvara u podzemnoj vodi i na taj način obrazuje značajne koncentracije Period poluraspada ovog izotopa je 3,824 dana i njegovim raspadanjem nastaju kraktkoživeći potomci polonijum ²¹⁸Po, olovo ²¹⁴Pb, bizmut ²¹⁴Bi, polonijum ²¹⁴Po i olovo ²¹⁰Pb čiji je period poluraspada 22.3 godine. Taloženje olova ²¹⁰Pb iz atmosfere na površinskom sloju zemljišta usled toga može biti izraženo.

1.2.1 Pojam ravnoteže u radioaktivnim nizovima

U radioaktivnim nizovima gde se radioizotopi sukcesivno rasapadaju sve dok se ne dobije stabilni radioizotop, postavlja se problem određivanja aktivnosti pojedinih radionuklida članova niza, odnosno broja atoma N, ukoliko su poznati period poluraspada $T_{1/2}$ ili konstanta raspada λ posmatranog radionuklida. Za radioaktivni niz od n članova, proces sukcesivne radioaktivne transformacije radionuklida može opisati sa n diferencijalnih jednačina:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3$$

$$.$$

$$\frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n$$
(1.3)

Radioizotop X₁ se raspada u nestabilni izotop X₂ koji se dalje raspada sve do stabilnog izotopa X_n (λ_n =0). Ovaj sistem jednačina se rešava za sledeće početne uslove: t=0, N₁=N₀₁; N₀₂=N₀₃=····N_{0n}=0. Ako je broj atoma N₁ prvog člana niza X₁ određen zakonom radioaktivnog raspada:

$$N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t} (1.4)$$

tada se opšti integral n-te u nizu diferencijalnih jednačina uz navedene uslove može izraziti u obliku:

$$N_{n}(t) = C_{1}e^{-\lambda_{1}t} + C_{2}e^{-\lambda_{2}t} + \dots + C_{n}e^{-\lambda_{n}t}$$
(1.5)

gde su

$$C_{1} = \frac{\lambda_{1} \lambda_{2} \cdots \lambda_{n}}{(\lambda_{2} - \lambda_{1})(\lambda_{2} - \lambda_{1}) \cdots (\lambda_{n} - \lambda_{1})} N_{01}$$
(1.6)

$$C_2 = \frac{\lambda_1 \ \lambda_2 \cdots \lambda_n}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \cdots (\lambda_n - \lambda_2)} N_{01}$$
(1.7)

$$C_n = \frac{\lambda_1 \ \lambda_2 \cdots \lambda_n}{(\lambda_1 - \lambda_n)(\lambda_2 - \lambda_n) \cdots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} \ N_{01}$$
(1.8)

konstante integracije određene prema navedenim početnim uslovima.

Tada se broj atoma N_n posmatranog radionuklida X_n u nizu nakon izvesnog vremena t može predstaviti formulom:

•

$$N_{n} = N_{1,0} \prod_{i=1}^{n-1} \lambda_{i} \sum_{i=1}^{n} \left[\frac{e^{-\lambda i t}}{\prod_{j=1, j \neq 1}^{n} (\lambda_{j} - \lambda_{i})} \right]$$
(1.9)

gde je $N_{1,0}$ broj atoma radionuklida X_1 za vreme t=0. Izraz (1.9) je poznat kao Batemann-ova formula i koristi se za određivanje broja atoma n-tog člana radioaktivnog niza nakon posmatranog vremena t.

Pojam radioaktivne ravnoteže je vezan za uslov $\frac{dN}{dt} = 0$. Primenom ovog uslova na članove niza, broj atoma bilo kog člana niza se ne menja, što se ustvari dešava u onom trenutku

vremena kada se raspadne onoliko atoma koliko se i stvori. Pošto ovaj uslov podrazumeva da je $\lambda = 0$, iz toga se može zaključiti da potpuna ravnoteža nije moguća, ali stanja bliska radioaktivnim ravnotežama su moguća. To je slučaj kada period poluraspada pretka teži beskonačnosti ili je znatno veći u odnosu na period potomka. Ovaj uslov je ispunjen u nizovima uranijuma i torijuma – $T_{1/2}(^{238}U) = 4,5x10^9$ godina i $T_{1/2}(^{232}Th) = 1,4x10^{10}$ godina. Pošto period poluraspada pretka teži beskonačnosti ispunjen je uslov da je $\lambda_1 = \frac{ln2}{T_{1/2}} \approx 0$ i aktivnost pretka je

konstantna. Aktivnost potomka se može izraziti na sledeći način:

$$A = \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (1 - e^{-\lambda_2 t})$$
(1.10)

Može se uočiti da aktivnost potomka raste sa vremenom, da bi za nekoliko perioda poluraspada ($\approx 7 T_{1/2}$) dostigla aktivnost pretka (Slika br.1.4 a), čime je uslov ravnoteže ispunjen $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$. Ovakav tip ravnoteže naziva se **sekularna ili trajna ravnoteža**.

Na osnovu jednakosti aktivnosti u radioaktivnom nizu, moguće je odrediti period poluraspada pretka ukoliko je period poluraspada potomka poznat:

$$\frac{N_1}{(T_{1/2})_1} = \frac{N_2}{(T_{1/2})_2} = \dots = \frac{N_n}{(T_{1/2})_n}$$
(1.11)

Apsolutna, ukupna aktivnost jednaka je sumi aktivnosti pretka i potomka i može se izraziti na sledeći način:

$$A_{tot} = \lambda_1 N_{01} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (2 - e^{-\lambda_2 t})$$
(1.12)

Apsolutna aktivnost se dakle uvećava dva puta. Proces uspostavljanja ravnoteže prikazan je na Slici br.1.4a.



Sl. 1.4. Trajna i prelazna ravnoteža [11]:

a) a - Narastajuća aktivnost potomka; b - Aktivnost pretka (T $\rightarrow \infty$); c - Totalna aktivnost; d - Raspad potomka

b) a - Narastajuća aktivnost potomka;
 b - Aktivnost pretka (T = 8.0h);
 c - Totalna aktivnost;
 d - Raspad potomka;
 e - Totalna aktivnost potomka u frakcijama pretka i potomka

Drugi tip ravnoteže sledi iz uslova $\lambda_1 < \lambda_2$, tj. kada konstanta rapada potomka λ_2 nije mnogo veća od konstante raspada pretka λ_1 . U tom slučaju za eksponencijalne funkcije važi uslov:

$$e^{-\lambda_2 t} < e^{-\lambda_1 t} \tag{1.13}$$

Tada se član $e^{-\lambda_2 t}$ može zanemariti, pa broj atoma potomka iznosi:

$$N_2 \approx \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t}$$
(1.14)

Prema ovom izrazu (1.14), kada je radioaktivna ravnoteža jedanput uspostavljena, apsolutna aktivnost opada sa periodom poluraspada pretka (Slika br.1.4b), a odnos broja atoma pretka i potomka dat je relacijom:

$$\frac{N_2}{N_1} \approx \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \tag{1.15}$$

Odnos merenih aktivnosti pri radioaktivnoj ravnoteži ovog tipa dat je kao:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \tag{1.16}$$

Ovaj tip ravnoteže naziva se tranzitna ili prelazna ravnoteža.

1.2.2 Narušavanje ravnoteže u radioaktivnim nizovima uranijuma i torijuma

Kada je radioaktivni niz u ravnoteži, aktivnosti svih radionuklida u nizu su iste, te se koncentracija predaka može odrediti merenjem intenziteta γ zračenja bilo kog potomka. Emanacija gasa radona iz uzoraka narušava ravnotežu nizova uranijuma i torijuma kod članova ²²²Rn i ²²⁰Rn. Držanjem uzoraka u hermetički zatvorenim sudovima u trajanju od oko 10 T_{1/2} (za ²²²Rn, ~40 dana; za toron ²²⁰Rn ~ 10 minuta) ova se ravnoteža može ponovo uspostaviti pre merenja.

Narušavanje ravnoteže usled geohemijskih procesa se može dogoditi kod dugoživećih članova niza (torijuma ²³⁰Th i radijuma ²²⁶Ra u nizu uranijuma ²³⁸U, te protoaktinijuma ²³¹Pa u nizu uranijuma ²³⁵U). Naime, kao član uran-radijumskog niza, ²²⁶Ra se nalazi u svim mineralima, rudama i ostalim uzorcima koje sadrže uran. Ako postoji sekularna radioaktivna ravnoteža urana ²³⁸U i radijuma ²²⁶Ra, na 1g urana dolazi 3.4 10⁻⁷g radijuma ²²⁶Ra. Međutim, u prirodnim geohemijskim procesima dolazi do raspadanja i ispiranja radijuma iz minerala i ruda urana, on se rastvara u vodi, migrira i gradi sekundarrne minerale, tako da često radijuma u uzorku ima manje ili više nego što odgovara njegovoj radioaktivnoj ravnoteži sa uranom, te izmerena aktivnost radijuma ²²⁶Ra i njegovih potomaka ne odražava stvarni sadržaj uranijuma ²³⁸U u uzorku.

Iz navedenog razloga pre određivanja uranijuma u analiziranim uzorcima zemlje treba proveriti da li postoji sekularna radioaktivna ravnoteža, tj. da li je aktivnost člana niza ²²⁶Ra jednaka aktivnosti dugoživećeg polaznog jezgra ²³⁸U.

1.2.2.1 Raspad radona ²²²Rn

Svako jezgro radona ²²²Rn se raspada kroz niz raspada preko polonijuma ²¹⁸Po, olova ²¹⁴Pb, bizmuta ²¹⁴Bi i polonijuma ²¹⁴Po do olova ²¹⁰Pb. Prilikom svake transformacije jezgra emituju odgovarajuće jonizujuće zračenje: alfa čestice, beta čestice ili gama zrake ili kombinaciju čestica i zraka. Na slici 1.5 data je najintenzivnija grana raspada radona ²²²Rn u nizu uranijuma ²³⁸U [21]

Radon se raspada α -raspadom do polonijuma ²¹⁸Po. Energija emitovane α čestice iznosi 5.49 MeV. Polonijum je metal čiji atomi se lepe za čestice prašine ili se talože na površinama sa kojima dođu u kontakt, npr. zidovi prostorije ili unutrašnjost pluća. ²¹⁸Po ima kratak period polu-raspada, samo 3.05 minuta, što znači da se najveći deo raspadne za 6 min od vremena nastanka. Kao i radon i polonijum je α emiter i raspada se na olovo ²¹⁴Pb, uz emisuju α čestice energije 6.0 MeV. Olovo ²¹⁴Pb je takođe u čvrstom stanju, ima period polu-raspada 26.8 minuta i raspada se emisijom β čestice i γ zraka na bizmut ²¹⁴Bi. ²¹⁴Bi je isto u čvrstom stanju i β emiter sa periodom poluraspada 19.8 minuta i njegovim raspadom nastaje polonijum ²¹⁴Po. ²¹⁴Po ima period polu-raspada samo 164 mikrosekunde, emituje α česticu energije 7.69 MeV i raspada se na olovo ²¹⁰Pb koji nije od značaja za merenje koncentracije radona zbog dugog perioda poluraspada – 22.3 godine.



Slika 1.5 Šema raspada radona ²²²Rn (žuta boja – alfa emiteri, plava boja – beta emiteri, crna bojadugoživeći izotop olova)

1.2.2.2 Raspad torona ²²⁰Rn

Slično radonu i toron se raspada kroz niz od 5 transformacija do stabilnog izotopa olova ²⁰⁸Pb, pri čemu se periodi polu-raspada značajno razlikuju (Slika1.6). Toron ima period polu-raspada samo 55.6 sekundi i emituje α česticu energije 6.29 MeV pri transformaciji u polonijum ²¹⁶Po koji se za vreme od 0.15 sekundi transformiše u olovo ²¹²Pb, emitujući α česticu energije 6.78 MeV. ²¹²Pb ima period polu-raspada 10.6 sati i transformiše se β raspadom u bizmut ²¹²Bi perioda polu-raspada 60.6 min. ²¹²Bi se u odnosu grananja 2:1 transformiše na dva načina: beta raspadom na polonijum ²¹²Po i α raspadom (energija α čestice 6.05 MeV) na talijum ²⁰⁸Tl. ²¹²Po

se odmah raspada u olovo ²⁰⁸Pb, emitujući α česticu energije 8.78 MeV, dok se ²⁰⁸Tl beta emisijom sa periodom polu-raspada od 3 min transformiše takođe u ²⁰⁸Pb.



Slika 1.6 Šema raspada torona ²²⁰Rn (žuta boja – alfa emiteri, plava boja – beta emiteri, crna bojadugoživeći izotop olova)

1.3 Radijacioni rizik i nivo izlaganja jonizujućim zračenjima

Verovatnoća da pojedinac doživi određeni štetni efekat kao rezulltat izlaganja jonizujućem zračenju, **radijacioni rizik**, određuje se preko **doze** - fizičke veličine koja služi kao kvantitativna mera nivoa izlaganja jonizujućem zračenju. Povećan radiacioni rizik može se javiti usled:

1. eksternog (spoljašnjeg) ozračivanja, kada se izvor zračenja nalazi izvan organizma i

2. internog (unutrašnjeg) ozračivanja, kada izvori jonizujućih zračenja dospevaju u organizam na sledeći način:

- inhalacijom (dominantno radon i njegovi potomci) i
- ingestijom unošenjem u organizam putem dugog lanca ishrane (zemljište-biljkeživotinje-čovek).



Slika 1.7 IAEA Safety Guide No.RS-G.1.8: Način izlaganja čoveka jonizujućim zračenjima preko dugog lanca ishrane (zemlljište-biljke-životinje-čovek) [12]

U zavisnosti od navedenih okolnosti ozračivanja primenjuju se odgovarajuće metode merenja:

1. Meri se doza zračenja u radijacionom polju

Dozimetri direktno mere zračenjem indukovano naelektrisanje i ta informcija se odgovarajućom kalibracijom pretvara u absorbovanu dozu - srednju apsorbovanu energiju E po jedinici mase m

$$D = \frac{dE}{dm} [Gy]$$
(1.17)

Zavisnost doze od aktivnosti izvora, za tačkaste izvore, data je relacijom

$$D = I_{\gamma} \frac{A}{R^2} t \tag{1.18}$$

gde je I_{γ} jonizaciona konstanta, A aktivnost izvora, R rastojanje i t vreme, te ako je poznat prostorni raspored svih radionuklida u okolini i putanja kretanja datog organizma u radijacionom polju, doza se može izračunati integraljenjem preko navedene formule.

Jedinica za apsorbovanu dozu od 1975. godine nosi naziv prema britanskom fizičaru Luisu Haroldu Greju (1905-1965). Ranija jedinica koja je bila u upotrebi je rad (skraćenica od radijaciona apsorbovana doza); 1 Gy=100 rad.

Problem radijacione zaštite nije rešen poznavanjem apsorbovane doze, jer biološki efekti zavise od tipa zračenja i prostornog rasporeda izvora zračenja i ozračenog sistema. Ta dva parametra uzima u obzir ekvivalentna doza

$$\mathbf{H} = \mathbf{D} \cdot \mathbf{Q} \cdot \mathbf{N} \left[\mathbf{S} \mathbf{v} \right] \tag{1.19}$$

gde je Q faktor kvaliteta zračenja, a N je proizvod svih modifikujućih faktora.

Jedinici za ekvivalentnu dozu 1979. godine dato je ime Sivert (Sv) u čast švedskog fizičara Rolfa Maksimilijana Siverta (1896-1966). Ranije korišćena jedinica rem (1Sv=100rem).

Ista jedinica (Sv-sivert) se koristi i za efektivnu dozu koja uzima u obzir i zavisnost težine oštećenja od osetljivosti određenog tkiva na datu vrstu zračenja.

2. Kod internog ozračivanja dozimetrijska merenja su nemoguća - u slučaju ingestije meri se koncentracija aktivnosti u hrani ili vodi za svaki radionuklid. S obzirom da sem nekoliko retkih čistih β -emitera (⁹⁰Sr, ³H) svi radionuklidi emituju γ -zračenje te je γ -spektrometrija nezamenjiva u slučaju simultane multizotopske analize prirodnih uzoraka. Ingestiona doza se izračunava na osnovu određene koncentracije aktivnosti pojedinih radionuklida u datoj vrsti hrane i količine hrane unete u organizam; primenom odgovarajućih modela.

Modeli podrazumevaju poznavanje složenih metaboličkih procesa. Iako su moguće znatne varijacije u zavisnosti od specifičnosti individue. Relevantni medicinski parametri za procenu ingestione doze su standardizovani i publikovani u vidu koncepta: "Referentnog čoveka". Na osnovu modela napravljeni su softveri koji proračunavaju doze kojima će biti izloženi ljudi i životinje u slučaju ispuštanja radionuklida u životnu sredinu. Takvi programi koji se danas uspešno koriste i koji implementiraju IAEA SRS19 Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment su ERICA i CROM6 [13].

Zbog štetnih efekata jonizujućih zračenja konstatovana je neophodnost formiranja **normi** izlaganja zračenju, te je 1928. godine osnovana međunarodna komisija za radiološku zaštitu ICRP (Internacional Commision on Radiological Protection) koja daje univerzalne preporuke po svim pitanjima zaštite od jonizujućeg zračenja, kao osnovu ograničenja-doze.

Nakon bombardovanja Hirošime i Nagasakija, atmosferskih proba novog nuklearnog oružja, puštanja u pogon brojnih istraživačkih i energetskih reaktora, došlo je do izuzetne zabrinutosti zbog zdrastvenih posledica, te Generalna Skupština UN formira 1956. godine naučni komitet za efekte atomskih zračenja - UNSCEAR (United Nations Scientific Committe on Effect of Atomic Radiation) kao najautoratativnije telo. Ovaj komitet ne postavlja standarde bezbednosti nego sakuplja i sistematizuje podatke i procenjuje doze, efekte i rizike od osnovnih izvora radijacije.

Od 1957. godine Međunarodna agencija za atomsku energiju - IAEA (International Atomic Energy Agency), na osnovu preporuka ICRP, podataka UNSCEAR, mišljena WHO (World Health Organization) i Međunarodne organizacije rada ILO (Internacional Labour Office), formira osnovne norme - standarde sigurnosti, koji služe svim zemljama članicama kao referenca u nacionalnom zakonodavstvu iz domene zaštite od jonizujućeg zračenja.

U našoj zemlji preporuke i norme međunarodnih organizacija su implementirane u Zakonu o zaštiti od jonizujućih zračenja i o nuklearnoj sigurnosti (Službeni glasnik Republike Srbije br. 36/2009) [14] iz koga proizilazi Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim

zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima (Službeni glasnik RS br. 86/2011.) [15] u cilju procene stepena individualne izloženosti stanovništva jonizujućim zračenjima. Na osnovu ovog Pravilnika neophodno je određivanje ukupne efektivne doze E koja predstavlja kvantitativnu meru ukupnog izlaganja jonizujućem zračenju usled navedenih mogućnosti ozračivanja:

$$E = H_{p}(d) + \sum_{j} e(g)_{j,ing} I_{ing} + \sum_{j} e(g)_{j,inh} I_{inh}$$
(1.20)

gde je $H_p(d)$ individualna eksterna doza, $e(g)_{j,ing}i e(g)_{j,inh}$ očekivane efektivne doze po jediničnom unošenju za radionuklid (j) unet hranom ili udisanjem za pojedinca u starosnoj grupi (g).

Preporukama Međunarodne komisije za zaštitu od zračenja ICRP (Publikacija 103, 2007) snižava se granica godišnje doze za profesionalce na 20 mSv/god usrednjeno na period od 5 god. (maksimalno godišnje 50 mSv). Za pojedince iz stanovništva granica godišnje doze je 1 mSv/god sa maksimalnim izlaganjem od 5 mSv tokom jedne godine, pod uslovom da se ne prekorači srednja godišnja vrednost od 1 mSv tokom 5 godina.

Ključni elementi u evoluciji osnovne koncepcije zaštite od jonizujućih zračenja su:

- 1. **ALARA** princip: Opšte prihvaćen međunarodni koncept za određivanje prihvatljivog nivoa rizika ALARA (As Low As Resonably Achievable), predstavlja zahtev da sve doze budu onoliko niske koliko je to razumno moguće postići (uzima u obzir ekonomske i društvene faktore, a prednost se uvek daje zdravstvenim faktorima).
- 2. Novi referentni nivo kontrole zračenja: Umesto maksimalno dozvoljenog nivoa po starim koncepcijama, kao referentni nivo za sprovođenje mera zaštite u praksi uvodi se prirodni fon. Ova mera vezana je sa metrološkim problemima:
- prirodni fon je često na pragu ili ispod praga detekcije merne tehnike i

- prirodni fon nije jednoznačno definisan. U zavisnosti od lokacije može veoma da varira (vruće tačke), te da bi se pouzdano tvrdilo da postoji kontaminacija prirodnim radionuklidima neophodna su prethodna sistematska merenja koncentracije aktivnosti u datom medijumu i određivanje tipičnih korelacija prirodnih radionuklida.

1.3.1 Prirodni izvori jonizujućih zračenja

Istraživanja vršena poslednje decenije pokazuju da u normalnim uslovima preko 70% ukupne godišnje doze koju prima stanovništvo potiče od prirodnih izvora jonizujućih zračenja, pri čemu je 40% uslovljeno udisanjem prirodnog radioaktivnog gasa, radona ²²²Rn, odnosno njegovih potomaka, slika 1.8. Pored radona od prirodnih izvora jonizujućeg zračenja veliki doprinos dozi daju i primordijalni radionuklidi (15%) i kosmičko zračenje (13%). Sem navedenih izvora najveći udeo u izlaganju stanovništva jonizujućem zračenju imaju izvori jonizujućeg zračenja u medicini (dijagnostika i terapija-preko 30%), dok su manje značajni izvori u industriji i javnoj upotrebi (nivomeri, gromobrani, javljači požara itd.).



Slika 1.8 UNSCEAR2008: Raspodela godišnje doze koje prima stanovništvo od izlaganja prirodnim izvorima jonizujućeg zračenja [16]

Rezultati novijih istraživanja o doprinosu prirodnih izvora jonizujućih zračenja dozi koju na godišnjem nivou primi stanovništvo na osnovu sprovedenih studija širom sveta su sumirani u Izveštaju UNSCEAR 2000 i u Tabeli 1.5 data je procena godišnje efektivne doze.

1.3.2 Problem NORM-a i TENORM-a

Poslednjih decenija stručna literatura ukazuje na narastajući problem NORM-a i TENORM-a u radioekologiji. NORM je skraćenica od engleskog izraza Naturally Occurring Radioactive Material - radioaktivni materijali koji se javljaju u povišenim koncentracijama u prirodi. Termin se obično upotrebljava i za one ljudske aktivnosti koje dovode po povećanog izlaganja prirodnim izvorima jonizujućeg zračenja, a ukoliko se pri takvim tehnološkim postupcima i povećava koncentracija prirodnih radionuklida koristi se i termin TENORM (Technologically-Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material).

Postupci i tehnološke aktivnosti koje dovode do preraspodele prirodne radioaktivnosti i do znatno većeg izlaganja stanovništva prirodnoj radioaktivnosti su: sagorevanje uglja u termoelektranama i deponovanje šljake i pepela, upotreba fosfatnih ruda u proizvodnji veštačkih đubriva i vađenje i prerada minerala, eksploatacija i sagorevanje nafte i gasa, recikliranje metala, drvna industrija, prečišćavanje vode, kopanje tunela i rad u rudnicima, posete pećinama, let avionom na dužim relacijama, građevinska industrija, industrija abraziva i lakova i sl. Ovakvi tehnološki postupci i ljudske aktivnosti moraju biti pod stalnom kontrolom radioaktivnosti i obaveza je i regulatornog tela i poslodavca da propišu i primenjuju tehničko-tehnološke uslove kako bi se izlaganje zaposlenog osoblja i stanovništva svelo na najniži mogući nivo.

Izvor jonizujućeg zračenja	Godišnja	efektivna doza [mSv]
Kosmičko zračenje	Srednja vrednost	Opseg
direktna komponenta	0.28 (0.30) ^a	
neutronska komponenta	0.10 (0.08)	
kosmogeni nuklidi	0.01 (0.01)	
ukupno	0.39	$0.3 - 1.0^{b}$
Spoljašnje terestrijalno gama zračenje		
na otvorenom	0.07 (0.07)	
u zatvorenom	0.41 (0.39)	
ukupno	0.48	0.3-0.6 ^c
Unutrašnje izlaganje		
uranijumov i torijumov niz	0.006 (0.01)	
Radon (²²² Rn)	1.15 (1.2)	
Toron (²²⁰ Rn)	0.10 (0.07)	
ukupno	1.26	0.2-10 ^d
Ingestija		
⁴⁰ K	0.17 (0.17)	
uranijumov i torijumov niz	0.12 (0.06)	
ukupno	0.29	
Totalna suma	2.4	1-10 ^e

Tabela 1.5. Godišnja efektivna doza od prirodnih izvora jonizujućeg zračenja [1]

a Rezultati iz prethodnih izveštaja dati u zagradama ()

b opseg od nivoa mora do velikih nadmorskih visina

c u zavisnosti od sadržaja radionuklida u zemljištu i građevinskom materijalu

d u zavisnosti od akumulacije radona u zatvorenom

e u zavisnosti od sadržaja radionuklida u hrani i pijaćoj vodi

1.3.3 Interakcija jonizujućeg zračenja sa živim organizmima

Iako još od samog otkrića radioaktivnosti bilo jasno da deo energije jonizujućeg zračenja emitovanog iz izvora biva apsorbovan u materiji kroz koju prolazi, nije mogao da se odgonetne izuzetno visok stepen osetljivosti živih organizama na ovu vrstu zračanja (radiobiološki paradoks-biološki efekat u izuzetnoj nesrazmeri sa predatom energiijom). Sredinom ovog veka ta činjenica je objašnjena postojanjem malih (oko 1 μ) vitalnih centara u ćeliji, ključnih za njen opstanak-ćelijske DNK. Negatvni efekti jonizujućeg zračenja kod živih organizama javljaju se usled direktnog oštećenja DNK ili usled indirektne interakcije. Indirektna interakcija uslovljena je radiolizom vode u ćeliji i forrmiranjem visokoreaktivnih, kratkoživećih (reda veličine mikrosekunde) slobodnih radikala. Za većinu indirektnih oštećenja uzrokovanih jonizujućim zračenjem se smatra da su nastala usled hidroksil radikala koji reaguje sa skoro svim tipovima molekula u živim ćelijama, izazivajući inaktivaciju enzima, a samim tim i celularna oštećenja.



Slika 1.9 Oštećenje DNK lanca uzrokovana jonizujućim zračenjem [17]

Radiosenzitivnost zavisi od naslednih faktora, tj. od sposobnosti ćelije za biološki oporavak, kao i od sposobnosti date vrste da redukuje koncentracije slobodnih radikala pomoću antioksidanasa. Smatra se da antioksidantna odbrana prvenstveno uključuje: reduktante rastvorljive u vodi (glutation, askorbat, urat), vitamine rastvorljive u vodi – vitamin E (α -tokoferol), β -karotin, enzime (glutation peroksidazu, katalazu, superoksid dismutazu). [18]

Najčešće proučavani efekti jonizujućeg zračenja uklujučivali su visoke doze i utvrđivanje mortaliteta jedinki nakon jednokratnog ozračivanja, čime je dobijena srednja letalna doza $LD_{50/30}$ (50% u roku od 30 dana). Rezultati ovih istraživanja dati su na slici 1.9 i pokazuju da su niže taksonomijske grupe manje osetljive na visoke doze jonizujućeg zračenja. U novije vreme mnogo pažnje se posvećuje odgovoru organizma na **niske doze jonizujućeg zračenja** tj. "adaptivnom odgovoru". Podaci ukazuju da niske doze mogu da rezultuju promenama u ćelijama i da postoji sposobnost adaptacije na efekte zračenja. Poznate manifestacije adaptivnog odgovora kod sisara su povišeni rast i povišena reproduktivna sposobnost.



Slika 1.10 Akutne letalne doze u Gy za pojedine taksonomijske grupe [16]

1.3.4 Radijacioni rizik od radona i definicije dozimetrijskih veličina

Radon i njegovi kratkoživeći potomci u vazduhu daju najveći doprinos izlaganju stanovništva prirodnim izvorima jonizujućeg zračenja. Iako je zdravstveni rizik od udisanja visokih koncentracija radona u podzemnim rudnicima poznat već odavno (pre 1600.godine, a 1925. godine se rak pluća kod radnika u rudnicima uranijuma direktno povezuje sa udisanjem radona), tek od 1970.-tih se obraća pažnja na izlaganje stanovništva radonu u zatvorenim prostorijama, gde se u pojedinim slučajevima radon akumulira do značajnih koncentracija i radijacioni rizik od radona i njegovih potomaka može biti uporediv sa izlaganjem u rudnicima.

Radijacioni rizik od inhalacije radona dominantno potiče od taloženja radonovih potomaka na zidovima bronhijalnog stabla i emisije alfa čestica (iako neki potomci emituju i beta čestice i gama zračenje) u bazalnim i sekretornim ćelijama gornjih disajnih puteva. Da bi se odredila doza za pluća koja potiče od inhalacije radona i potomaka bitno je definisati veličine kao što su: ukupna energija emitovanih alfa čestica po atomu u nizu raspada radona ²²²Rn ili torona ²²⁰Rn, zatim koncentracija ukupne emitovane energije alfa čestica u nizu radona ili torona u 1 m³ vazduha (upotrebljava se engleski akronim PAEC - potential alpha energy concentration [J/m³]) i izlaganje ukupnoj emitovanoj energiji alfa čestica (engl. *exposure*) koja se izražava u [J h/m³] ili u vansistemskoj jedinici WLM – Working Level Month:

> Ukupna energija emitovanih α-čestica za jedan atom u lancu raspada radona ε_p (*engl. Potential alpha energy*) je ukupna energija svih α–čestica emitovanih u procesu raspada atoma radona ²²²Rn ili torona ²²⁰Rn do stabilnog izotopa ²¹⁰Pb. U tabelama 1.6 i 1.7 [19] date su vrednosti ukupne moguće energije emitovanih alfa čestica potomaka ²²²Rn i ²²⁰Rn, po jednom atomu i po jedinici aktivnosti.

Koncentracija ukupne emitovane energije alfa čestica u nizu radona ili torona u 1 m³ vazduha PAEC (*engl. Potential alpha energy concentration*) predstavlja sumu mogućih energija alfa čestica svih atoma u metru kubnom vazduha bilo koje smeše kratkoživećih radonovih ili toronovih potomaka:

$$PAEC = \sum_{i=1}^{3} C_i \frac{\varepsilon_{p,i}}{\lambda_{r,i}}$$
(1.21)

gde je C_i broj atoma i-tog radonovog kratkoživećeg potomka po m³ vazduha – za radon (i=1 za ²¹⁸Po; i=2 za ²¹⁴Pb i i=3 za ²¹⁴Bi) i za toron (i=1 za ²¹⁶Po; i=2 za ²¹²Pb i i=3 za ²¹²Bi).

Tabela 1.6 Ukupne energije alfa čestica po jednom atomu ϵ_p i po jediničnoj aktivnosti ϵ_p/λ_r u raspadu radona ²²²Rn [19]

Padionuklid	T	ε _p	$\begin{bmatrix} \epsilon_{\rm p} & \epsilon_{\rm p} \\ [10^{-12} {\rm J}] & [10^{-10} {\rm J}] \end{bmatrix}$	$\epsilon_{\rm p}/\lambda_{\rm r}$	PAEC po Bq/m ³	
Kaulollukliu	1 1/2	[MeV]		[10 ⁻¹⁰ J Bq ⁻¹]	[MeV L ⁻¹]	10 ⁻⁶ WL
²¹⁸ Po	3.05 min	13.7	2.19	5.79	3.62	27.8
²¹⁴ Pb	26.8 min	7.69	1.23	28.5	17.8	137
²¹⁴ Bi	19.9 min	7.69	1.23	21.0	13.1	101
²¹⁴ Po	164 µs	7.69	1.23	2.9x10 ⁻⁶	1.8x10 ⁻⁶	1.4x10 ⁻⁵
Ukupno po Bq radona u ravnoteži			55.3			

Vansistemska jedinica za PAEC je Working Level ili WL i iznosi $1WL = 21 \text{ mJ/m}^3$. Jednom WL odgovara oslobođena energija alfa zračenja od $1.3 \times 10^{14} \text{ eV/m}^3$ u vazduhu. U slučaju da je ²²²Rn u ravnoteži sa svojim kratkoživećim potomcima, koncentracija aktivnosti radona pri kojoj je PAEC = 1 WL, iznosi 3.7 kBq/m³. Kako je ovo dosta visoka vrednost, za merenja radona u zatvorenim prostorijama koristi se mWL koji je 0.001 WL.

Radionuklid	T 1/2	ε _p [MeV]	ε _p [10 ⁻¹² J]	ε _p /λ _r [10 ⁻¹⁰ J Bq ⁻¹]	PAEC po Bq/m ³	
					[MeV L ⁻¹]	10 ⁻⁶ WL
²¹⁶ Po	0.15 s	14.6	2.34	5.06×10^{-3}	3.1x10 ⁻³	0.0243
²¹² Pb	11 h	7.80	1.25	690	431	3320
²¹² Bi	61 min	7.80	1.25	65.5	40.9	315
²¹² Po	310 ns	8.78	1.40	6.2x10 ⁻⁹	3.88x10 ⁻⁹	3.0x10 ⁻⁸

Tabela 1.7 Ukupne energije alfa čestica po jednom atomu ϵ_p i po jediničnoj aktivnosti $\epsilon_p/\lambda_r u$ raspadu torona ^{220}Rn [19]

Izlaganje ukupnoj emitovanoj energiji alfa čestica (engl. exposure) - predstavlja proizvod ukupne emitovane energije alfa čestica i vremena izlaganja. Sistemska jedinica za ovu veličinu je J h/m3, a vansistemska, tradicionalna, jedinica je Working Level Month ili skraćeno WLM. Osoba koja provede 173 sata u atmosferi u kojoj je PAEC=1 WL, izložena je radonovim potomcima od 1 WLM.

WLM je mesečni nivo izlaganja potomcima radona i torona, pri čemu je radni nivo izlaganja ekvivalentan smeši radonovih i toronovih potomaka za koju je ukupna energija emitovanih alfa čestica jednaka 1,5 10⁵ MeV. U tom slučaju koncentracija ukupne energije emitovanih alfa čestica PAEC iznosi 2.5 10⁻⁵ J/m³, a izlaganje iznosi:

$$1 \text{ WLM} = 3.54 \text{ mJ h/m}^3$$
 (1.22)

U Pravilniku o granicama kontaminacije lica, radne i životne sredine (sl.glasnik RS 38/2011) pri inhalaciji kratkoživećih potomaka radona (²²²Rn) i torona (²²⁰Rn) granice radioaktivne kontaminacije vazduha izražavaju se kao granice izlaganja ukupnoj energiji emitovanih alfa čestica, odnosno mesečnog izlaganja radonu. Granice godišnjeg unošenja inhalacijom potomaka radona (²²²Rn) i potomaka torona (²²⁰Rn), za profesionalno izložena lica utvrđene su u Tabeli 1.8. koja je odštampana uz ovaj pravilnik i čini njegov sastavni deo.

Odnos doze i izlaganja radonu i potomcima predstavlja dozni konverzioni faktor **DCF za radon** (DCF = Doza / PAEC t), gde je t vreme inhalacije. Vrednosti ovih doznih faktora su dobijene na osnovu epidemioloških studija koje su sprovedene na rudarima iz rudnika uranijuma. U publikaciji ICRP 65 se predlaže vrednost 5 mSv/WLM za profesionalno izlaganje i 4 mSv/WLM za izlaganje stanovništva [20]. Doza koju pojedinac primi od radonovih kratkoživećih potomaka se izračunava množenjem srednje vrednosti izlaganja u WLM sa faktorom 5 mSv/WLM koji predstavlja srednju vrednost efektivne doze po jedinici izlaganja radonovim potomcima predloženu od strane UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Efects of Atomic Radiation). Na taj način se može proceniti efektivna doza koju je određeni pojedinac primio udisanjem radona i njegovih kratkoživećih potomaka.

Veličina	Jedinica	Vrednost za potomke radona	Vrednost za potomke torona					
Godišnji prosek tokom 5 godina								
Unošenje ukupne energije emitovanih alfa čestica	J	0,017	0,051					
Izlaganje ukupnoj energiji emitovanih alfa čestica	J h/m ³	0,014	0,042					
	WLM	4,0	12					
Maksimum u pojedinačnoj godini								
Unošenje ukupne energije emitovanih alfa čestica	J	0,042	0,127					
Izlaganje ukupnoj energiji emitovanih alfa čestica	J h/m ³	0,035	0,105					
	WLM	10	30					

Tabela 1.8 Sl.glasnik RS 38/2011: Granice unošenja i izlaganja za potomke radona i torona [21]

Kada je poznat dozni konverzioni faktor DCF, efektivna doza H koju prime npr. profesionalna izložena lica (radnici) od udisanja radona i potomaka može se proceniti na osnovu izmerene koncentracije aktivnosti radona [37]:

$$H = \frac{C_{Rn} \times F}{3700} \times \frac{t}{170} \times DCF \tag{1.23}$$

gde je C_{Rn} koncentracija aktivnosti radona u vazduhu $[Bq/m^3]$ mereno različitim mernim tehnikama na radnom mestu, F je faktor ravnoteže između radona i potomaka, t je vreme izlaganja radnika (6 h po radnom danu) i DCF je dozni konverzioni faktor. Kada je koncentracija aktivnosti potomaka u vazduhu poznata C_{RnDP} u $[Bq/m^3]$ tada ta izmerena vrednost zamenjuje izraz $C_{Rn}xF$ u jednačini (1.23). Ukoliko nije određen faktor ravnoteže između radona i potomaka, tada ICRP-65 preporučuje da se koristi vrednost 0.40.

Faktor ravnoteže F - definiše se kao količnik ravnotežne ekvivalentne koncentracije radona C_{eq} [Bq/m³] i izmerene koncentracije radona u vazduhu C_0 [Bq/m³]:

$$\mathbf{F} = \mathbf{C}_{\text{eq}}/\mathbf{C}_0 \tag{1.24}$$

Ravnotežna ekvivalentna koncentracija radona C_{eq} (engl. equilibrium equivalent concentration EEC) odnosi se na neravnotežnu smešu kratkoživećih radonovih potomaka u vazduhu i to je ona koncentracija radona u radioaktivnoj ravnoteži sa kratkoživećim potomcima koji imaju istu koncentraciju ukupne energije alfa čestica kao i neravnotežna smeša na koju se EEC odnosi. Skraćena oznaka za EEC je C_{eq}.

$$C_{eq} = 0.105 C_1 + 0.515 C_2 + 0.380 C_3 \quad (^{222}Rn \ niz) \tag{1.25}$$

$$C_{eq} = 0.913 C_1 + 0.087 C_2 \qquad (^{220} Rn \quad niz) \qquad (1.26)$$

gde su C₁, C₂ i C₃ koncentracije aktivnosti za potomke ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi iz niza radona respektivno i ²¹²Pb i ²¹²Bi (C₁ i C₂) iz niza torona.

Ravnotežna koncentracija može se lako po potrebi prevesti u koncentraciju ukupne energije alfa čestica (PAEC) na sledeći način:

$$1\frac{Bq}{m^{s}} = 5.56 \ 10^{-6} \frac{mJ}{m^{s}} = 0.27 \ mWL \ (^{222} Rn) \tag{1.27}$$

$$1\frac{Bq}{m^{s}} = 7.6 \ 10^{-5} \frac{mJ}{m^{s}} = 3.64 \ mWL \ (toron) \tag{1.28}$$

Za procenu godišnje efektivne doze od radona i njegovih potomaka prema [22] može se koristiti sledeća formula:.

$$Dose[nSv] = C_0(\varepsilon_r + \varepsilon_d F) \cdot O, \qquad (1.29)$$

gde je C₀ is srednja godišnja koncentracija radona u Bq/m³, ε_r (0.17 nSv/h po Bq/m³) i ε_d (9 nSv/h po Bq/m³) su konverzioni faktori za radon i kratkoživeće potomke respektivno utvrđeni na osnovu epidemioloških studija, F je faktor ravnoteže između radona i potomaka (F = 0.4 za zatvorene prostorije i F=0.6 na otvorenom) i O je okupacioni faktor (vreme koje prosečan čovek provede u zatvorenom prostoru u toku jedne godine (O=7000 h u zatvorenom i O=1760 h na otvorenom).

Za toron UNSCEAR 1993 Report predlaže vrednosti 0,11 nSv po Bq/m³, dok su vrednosti za potomke torona modifikovane ICRP 66 publikacijom i iznose 40 nSv po Bq/m³ i u zatvorenim prostorijama i na otvorenom.

Neke od ovih dozimetrijskih veličina je lako odrediti ako su izmerene aktivnosti pojedinih potomaka i radona u vazduhu, međutim u najvećem broju slučajeva koncentracije aktivnosti potomaka nisu poznate, tako da se doza procenjuje na osnovu faktora ravnoteže, odnosno relativnog odnosa koncentracije radona i potomaka. Pošto na faktor ravnoteže veliki
uticaj imaju uslovi sredine, klimatski faktori, kao i ventilacija, zbog toga je neophodno odrediti faktor ravnoteže za svaki realan slučaj procene dozimetrijskih veličina.

1.3.5 Dozni konverzioni faktori i koncept AMAD

Procena efektivne doze respiratornog trakta po jedinici izlaganja ²²²Rn se može izvesti na osnovu analize informacija o distribuciji veličine aerosola, frakciji nepripojenih radonovih potomaka aerosolima u vazduhu, brzini udisanja, udelu taloženja u disajnim putevima, brzini čišćenja preko mukusa i lokaciji ćelija meta. Takve procene zavise od korišćenog modela i obavezno uključuju velike nesigurnosti od ulaznih podataka i aproksimacija ugrađenih u odgovarajuće modele za računanje.

Sa druge strane autori Birchall and James [23] su razvili dozimetrijski pristup za izračunavanje doznih faktora DCF i predlažu vrednost od 15 mSv/WLM kao najbolju procenu za vazduh u zatvorenim prostorijama. Ova vrednost je tri puta veća od preporučene, razlog tome je i veliki doprinos nepripojene frakcije. Nepripojeni (slobodni) radonovi potomci su ultrafini klasteri malih dimenzija (< 10 nm) u većini slučajeva pozitivno naelektrisani i hemijski aktivni. Verovatnoća taloženja potomaka u ljudskim plućima je znatno veća za nepripojene nego za pripojene potomke. Koncentracija nepripojene frakcije u vazduhu zavisi od više parametara i kreće se od 0.3 do 33%.

Nepripojena frakcija radonovih potomaka se izražava preko udela u ukupnoj energiji alfa čestica f_{un} (unattached – nepripojeni). Medijana nepripojene frakcije u kućama iznosi $f_{un} = 0.05$ [24], ali može da varira za faktor 2 u zavisnosti od lokalnih izvora ili filtracije vazduha. Prema [25] dozni konverzioni faktor DCF je linearna funkcija nepripojene frakcije:

$$DCF(f_{un}) = 11.35 + 0.43 f_{un} \tag{1.30}$$

Naravno ova zavisnost doznog konverzionog faktora od nepripojene frakcije se može i dvojako izraziti ako se uzme u obzir i način udisanja vazduha (disanje na usta ili dianje na nos). U literaturi se može pronaći [26] da Porstendorfer predlaže sledeće izraze za račun DCF u zavisnosti od disanja na usta i disanja na nos:

disanje na usta
$$DCF = 101 \times f_{un} + 6.7 \times (1 - f_{un})$$
 (1.31)

disanje na nos
$$DCF = 23 \times f_{un} + 6.2 \times (1 - f_{un})$$
 (1.32)

Za naučna istraživanja publikacija ICRP 66 preporučuje upotrebu samo izračunatih konverzionih faktora. AMAD koncept koji se danas najčešće primenjuje za izračunavanje doznih konverzionih faktora za radon i toron zasniva se na određivanju medijane raspodele dijametara radioaktivnih aerosola u vazduhu - **AMAD**, u literaturi se sreće i oznaka AMD (*engl. activity median diameter*).

Relativna raspodela radioaktivnih aerosola $\Delta c(d) / \Sigma \Delta c(d)$ (d je dijametar čestica aerosola u vazduhu) zavisi od koeficijenta pripajanja aerosolima $\beta(d)$ i relativne raspodele po veličini prirodnih aerosola $\Delta Z(d) / \Sigma \Delta Z(d)$ na sledeći način [27]:

$$\frac{\Delta c(d)}{\Sigma \Delta c(d)} = \frac{\beta(d)}{\overline{\beta}} \frac{\Delta Z(d)}{\Sigma \Delta Z(d)}$$
(1.33)

gde je $\overline{\beta}$ srednji koeficijent pripajanja koji je konstantan parametar za jednu vrstu aerosola.

Postoji veliki broj teorijskih i eksperimentalnih istraživanja ove raspodele u zavisnosti od koeficijenta pripajanja i za radon i za toron. Relativna raspodela po veličinama nepripojenih radonovih potomaka (klastera) je funkcija dijametara klastera i zavisi od vlažnosti vazduha, prisutnih gasova u vazduhu i raspodele naelektrisanja u vazduhu. Dimenzije klastera se određuju na osnovu merenja koeficijenta difuzije slobodnih radonovih potomaka. U literaturi postoje podaci za takva merenja u zatvorenim prostorijama sa visokim sadržajem radona [28, 29, 30]. U većini slučajeva ove raspodele se mogu aproksimirati sa tri log-normalne raspodele, pri čemu su raspodele određene sa medijanom dijametara aerosola (AMAD), geometrijskom standardnom decvijacijom (σ g) i slobodnom frakcijom radonovih potomaka (f_{un}): AMAD vrednosti su 0.60 nm, 0.85 nm i 1.3 nm respektivno (slika 1.11 a) [31]. Na mestima sa visokom koncentracijom radona i/ili visokim sadržajem vlage u vazduhu raspodela sa AMAD vrednošću od ~1.3 nm izostaje (slika 1.11 b). Moguće objašnjenje je da u ovakvim slučajevima brzina neutralizacije raste sa porastom vlažnosti i koncentracije radona u vazduhu.



Slika 1.11 levo: a) Relativna raspodela nepripojene frakcije po veličini u vazduhu zatvorenih prostorija; desno: b) Relativna raspodela nepripojene frakcije po veličini u vazduhu stanice za napajanje vodom sa visokom koncentracijom radona i velikom vlažnošću

Radonovi potomci u vazduhu se pored nepripojene (slobodne) frakcije nalaze i u pripojenoj formi u vidu radioaktivnih aerosola većih dimenzija (10 – 1000 nm). Relativna raspodela po veličinama za ovakve čestice u vazduhu ima tri oblika ili modula: jezgroviti (AMAD: 30 - 40 nm), akumulacioni (AMAD: 250 - 450 nm) i grubi oblik (AMAD: 2000 - 6000 nm). Na otvorenom dominira akumulacioni oblik raspodele aerosola, dok je u zatvorenim i slabo

ventiliranim prostorijama bez dodatnih izvora aerosola – kao što je duvanski dim ili kuvanje AMAD ili medijana raspodele pomerena ka nižim vrednostima (100 - 200 nm), videti na slici 1.12 [31]. U takvim uslovima, grubog modula aerosola gotovo i da nema zbog izraženog taloženja velikih čestica aerosola na površine zidova u prostoriji. Korišćenje električnih motora, otvorenog plamena ili električnih grejalica dovodi do proizvodnje aerosola manjih dimenzija oko 50 nm, dok duvanski dim stvara aerosole dijametra od 300 nm. U svakom od ovih slučajeva se raspodela aerosola po veličinama može predstaviti log-normalnom raspodelom sa geometrijskom standardnom devijacijom sa približnom vrednošću 2 [1].



Slika 1.12 Relativna raspodela radioaktivnih aerosol²¹²Pb merena u zatvorenom prostoru (-----) i na otvorenom (-----)

Brzina udisanja vazduha je takođe značajan dozimetrijski faktor jer definiše zapreminu vazduha unetu u pluća. Ovaj faktor zavisi od stepena aktivnosti pojedinca, razlikuje se za polove i za uzrast i nije ga lako izmeriti. U literaturi postoje vrednosti koje su vremenom modifikovane i najbolja procena je 22,2 m³/d za odraslog muškarca i 17,7 m³/d za odraslu žensku osobu [1]. Na slici 1.12 date su zavisnosti doznog konverzionog koeficijenta od medijane raspodele radioaktivnih klastera nepripojeni radonovih potomaka u vazduhu za različite vrednosti brzine udisanja i za različite vrednosti nepripojene frakcije [1].



Slika 1.13 levo: a) Zavisnost doznog konverzionog koeficijenta od AMAD-a [nm] za nepripojenu frakciju f_{un}=0,05 i različite brzine udisanja (oralno i nazalno disanje); desno b) Zavisnost doznog konverzionog koeficijenta od AMAD-a [nm] za brzinu udisanja 0,6 m³/h za različite nepripojene frakcije f_{un}

Na osnovu epidemioloških studija koje obuhvataju izlaganje radonu u podzemnim rudnicima i ostalim kancerogenim aerosolima, kao što je dim cigarete, 75% tumora pluća je lokalizovano u bronhijalnom stablu na mestima grananja i 15% u parenhimu, u oblasti izmene gasova [1]. Dozimetrija udahnutog radona i radonovih potomaka je stoga usmerena na ćelije bronhijalnog epitela i poznavanje fizičkih i bioloških parametara koji utiču na dozu koju prime ove ćelije od alfa zračenja: distribucija veličine aerosola, udeo nepripojenih potomaka, brzina udisanja i dubina na kojoj se nalaze ćelije meta u tkivu. Mesto taloženja radonovih potomaka u plućima, kao i aktivnost deponovana u plućima zavisi u velikoj meri od veličine udahnutih čestica.

U slučaju inhalacije, zbog kompleksnosti anatomije respiratornog trakta i samih procesa, ne postoji jedinstven model za izračunavanje doze na osnovu izmerenih koncentracija aktivnosti kritičnih radionuklida u vazduhu. Doza koju prime različiti delovi respiratornog sistema će se znatno razlikovati u zavisnosti od raspodele veličina radioaktivnih čestica udahnutog vazduha. ICRP 66 daje reviziju modela respiratornog trakta iz publikacije ICRP 30 na osnovu novih saznanja ne samo iz anatomije i fiziologije respiratornog trakta koja su tada bila dostupna, nego i na osnovu boljeg poznavanja depozicije, čišćenja i bioloških efekata udahnutih radioaktivnih čestica.

Novi dozimetrijski model je proširen eksplicitno na sve članove populacije i uzima u obzir specifičnosti različitih uzrasta (bebe od 3 meseca, deca od 1, 5, 10 i 15 godina starosti i odrasli). Osnovna razlika između dva modela je u tome da model iz publikacije ICRP 30 podrazumeva određivanje srednje doze za cela pluća, dok novi model izračunava doze za specifična tkiva. Dijagram respiratornog trakta po modelu ICRP 66 prikazan je na slici 1.14.

Radioaktivni aerosoli sa dijametrima u intervalu od 0.1 do 10 nm se najbolje talože u ljudskim plućima. Aerosoli većih dimenzija se zadržavaju u nosu i usnoj duplji ne dopirući do osetljivog respiratornog epitela bronhijalnog stabla. Najosetljivije na zračenje su ćelije bazalnog i sekretornog sloja i potrebno je izračunati energiju predatu ovim slojevima. Položaj ovih ćelija u epitelu je od izuzetnog značaja za proračun apsorbovane doze u njima pošto je domet alfa čestica

u tkivu 48 μ m (6 MeV) i 71 μ m (7.69 MeV). Zid bronhije/bronhiole sastoji se iz nekoliko slojeva: sa unutrašnje strane se nalazi sloj sluzi (mucus), ispod su cilije i nakon sloja ispunjenog fluidom i tkivom nalazi se epitel sa slojem sekretornih i bazalnih ćelija. Ispod sloja bazalnih ćelija nalazi se bazna membrana i krvni sudovi.



1.14 ICRP 66 Model ljudskog respiratornog trakta [32]

Dozimetrijski model ljudskih pluća je kompleksan model koji se sastoji iz sledećih segmenata [33]:

- > geometrijski model traheo-bronhijalnog stabla i pulmanornog dela,
- matematički tretman depozicije aerosola na unutrašnjim zidovima vazdušnih puteva (bronhija i bronhiola),
- biološki model transporta nataloženih radonovih potomaka, čišćenjem ili prenosom u krv,
- model raspodele ćelija mete i
- proračun apsorbovane energije (doze).

ICRP 30 model određuje dozne konverzione faktore za 1 µm AMAD, ali daje i mogućnost za izračunavanje doznih konverzionih faktora za različite vrednosti AMAD-a. ICRP 66 model je znatno kompleksniji i potrebni su kompjuterski programi [25] (npr. LUDEP – Lung Dose Evaluation Program ili RADEP – Radon Dose Evaluation Program, ModeLung) za izračunavanje efektivnih doza uz moguće ispitivanje zavisnosti doze od raznih relevantnih parametara kao što su: dijametar aerosola AMAD; brzina udisanja; faktor ravnoteže radona i potomaka; slobodna frakcija itd.

Dozni konverzioni faktori za pojedinačne radionuklide iz torijumovog i uranijumovog niza, kao i za celokupne nizove su dati u Tabeli 1.9. Dozni konverzioni faktori su očekivane efektivne doze izražene u mSv/Bq za pojedinačene radionuklide, a za celokupne nizove jedinica za očekivane efektivne doze je mSv/ α dps (alfa raspad u sekundi).

		AMAD		
Radionuklidi	Tip ¹	1 μm	5 μm	10 µm
		Niz torijuma		
²³² Th	S	$2,3x10^{-2}$	$1,2x10^{-2}$	8,1x10 ⁻³
²²⁸ Ra	М	2,6x10 ⁻³	1,7x10 ⁻³	9,7x10 ⁻⁴
²²⁸ Th	S	$3,9x10^{-2}$	$3,2x10^{-2}$	$1,8x10^{-2}$
²²⁴ Ra	М	$2,9x10^{-3}$	$2,4x10^{-3}$	$1,2x10^{-3}$
		Niz uranijuma		
²³⁸ U	S	$7,3x10^{-3}$	$5,7x10^{-3}$	$3,5 \times 10^{-3}$
²³⁴ U	S	8,5x10 ⁻³	6,8x10 ⁻³	$4,2x10^{-3}$
²³⁰ Th	S	1,3x10 ⁻²	$7,2x10^{-3}$	$5,2x10^{-3}$
²²⁶ Ra	М	$3,2x10^{-3}$	$2,2x10^{-3}$	$1,5 \times 10^{-3}$
²¹⁰ Pb	F	8,9x10 ⁻⁴	$1,1x10^{-3}$	9,4x10 ⁻⁴
²¹⁰ Po	М	3,0x10 ⁻³	$2,2x10^{-3}$	1,1x10 ⁻³
Th koncentrat ²	М	$3,6x10^{-2}$	$2,6x10^{-2}$	$1,5 \times 10^{-2}$
Th koncentrat ²	S	$3,1x10^{-2}$	$2,2x10^{-2}$	$1,3x10^{-2}$
Th prašina				
Th - niz		1,3x10 ⁻²	9,7x10 ⁻³	5,7x10 ⁻³
Prašina uranijuma				
²³⁸ U - niz		6,2x10 ⁻³	$4,5x10^{-3}$	2,9x10 ⁻³

Tabela 1.9 Inhalacioni konverzioni dozni faktori za pojedinačne radionuklide i nizove uranijuma i torijuma za različite vrednosti AMAD [35]

¹ – F - brza apsorpcija iz respiratornog trakta u krv

M – umerena apsorpcija iz respiratornog trakta u krv

S – spora apsorpcija iz respiratornog trakta u krv

² – Podrazumeva sveže separisan torijum (232 Th + 228 Th)

Konverzioni faktori i jedinice merenja:					
Aktivnost	1 Bq	=1 raspad u sekundi (s ⁻¹)			
	1 Ci	$=3.7 \times 10^{10} \mathrm{Bq}$			
	1 pCi/l	$=37 \text{ Bq/m}^3$			
	1 Bq/kg	=0.027 pCi/g			
	1 WL	$=1.3 \times 10^5 \text{ MeV/L}$			
PAEC		$=2.08 \times 10^{-5} \text{ J/m}^3$			
	1 mWL	$=20.8 \text{ nJ/m}^3$			
	EEC (²²² Rn)	=0.104C[²¹⁴ Po]+0.517C[²¹⁴ Pb]+0.379C[²¹⁴ Bi]			
	EEC (220 Rn)	=0.913C[²¹² Pb]+0087C[²¹² Bi]			
Potomci radona	za ²²² Rn EEC [Bq/m ³]	=3700 x PAEC [WL]			
²²⁰ Rn	PAEC [nJ/m ³]	$=5.62 \text{xEEC}[\text{Bq/m}^3]$			
	za ²²⁰ Rn EEC [Bq/m ³]	=276 x PAEC [WL]			
	PAEC [nJ/m ³]	=75.4xEEC[Bq/m ³]			
	1 Bq/m ^{3 222} Rn	=2.81 nJ/m ³ PAEC za F=0.5 = 1.35×10^{-4} WL			
Faktor	1 pCi/l ²²² Rn	=5.0x10 ⁻³ WL za F=0.5			
ravnoteže F=EEC/C[Rn]	1 Bq/m ^{3 220} Rn	=3.77 nJ/m ³ PAEC za F=0.05 = 1.81×10^{-4} WL			
	1 pCi/l ²²⁰ Rn	$=6.7 \times 10^{-3}$ WL za F=0.05			
	1 WLM	=1 WL za 170h			
Izlaganje		$=3.54 \times 10^{-3} \text{ J h/m}^{3}$			
	radeći 170h mesečno za jednu godinu na WL	=12 WLM			
	živeći 1 godinu na WL (100% boravka)	=51.5 WLM			

ANEKS I - JEDINICE DOZIMETRIJSKIH VELIČINA ZA PROCENU DOZA OD RADONA I KONVERZIONI FAKTORI ZA PRETVARANJE JEDINICA

za 1 godinu izlaganja za 100% boravka; F=0.5 za ²²² Rn; F=0.05 za ²²⁰ Rn				
	Izlaganje (1 Bq/m ^{3 222} Rn)	=2.81 nJ y/m ³ =2.46x10 ⁻⁵ J h/m ³ =7.0x10 ⁻³ WLM		
Izlaganje (1 pCi/l ²²² Rn)		=0.26 WLM		
	Izlaganje (1 Bq/m ^{3 220} Rn)	=3.77 nJ y/m ³ =3.30x10 ⁻⁵ J h/m ³ =9.3x10 ⁻³ WLM		
	Izlaganje (1 pCi/l ²²⁰ Rn)	=0.35 WLM		
D	1 Gy	= 1 J/kg		
Doza	1 Gy	= 100 rad		
Ekvivalentna doza	1 Sv	= 100 rem		

GLAVA 2. Gama spektrometrijska metoda ispitivanja radioaktivnosti

Niske aktivnosti u uzorcima iz životne sredine se mogu detektovati samo pomoću izuzetno osetljivih instrumenata, pa se za ispitivanje radioaktivnosti najviše koristi gama spektrometrija sa poluprovodničkim detektorima, koja omogućava identifikaciju i kvantitativno određivanje velikog broja radionuklida - gama emitera u raznovrsnim matricama. Visoka rezolucija poluprovodničkih detektora omogućava relativno brzu i preciznu identifikaciju radionuklida i određivanje njihove aktivnosti na principu konvertovanja upadne energije gama zračenja u električne signale različite visine. Danas gama spektrometrija predstavlja najrasprostranjeniju nuklernu analitičku tehniku u raznim oblastima istraživanja: monitoring nuklearnih postrojenja, medicinska fizika, nuklearna medicina, radioekologija, ispitivanje materijala, geologija, industrija, poljoprivreda, biofizika i sl.

Još jedna od prednosti gama-spektrometrije u odnosu na ostale analitičke nuklearne tehnike je nedestruktivna i jednostavna priprema uzoraka. Alfa spektrometrija, na primer zahteva složenu i dugotrajnu proceduru pripreme uzorka u obliku veoma tankog sloja ili hemijskih rastvora sa odgovarajućim scintilatorom. Tehnika gama spektrometrije je danas dominantna univerzalna tehnika za merenje koncentracije jezgara gama emitera, pretežno baš zbog toga jer se prihvatljivi pragovi detekcije mogu postići bez ikakvog hemijskog tretmana uzorka.

Metode brojanja i identifikacije nuklearnih događaja zasnivaju se na detekciji i registraciji efekata interakcije naelektrisanih čestica (α , β) ili zračenja (γ , X) koje nastaje kao posledica radioaktivnog raspada jezgara pojedinih nuklida sa materijalom detektora. Pored brojanja pojedinačnih događaja raspada, moguće je i određivanje vrste emitovanih čestica/zračenja, njihove energije, pa time i identifikacija pojedinih radionuklida u njihovoj smeši (spektroskopija čestica/zračenja). Poznavajući aktivnost uzorka ili preparata A (broj raspada u jedinici vremena) uvek je moguće izračunati broj prisutnih radioaktivnih jezgara N, naravno, uz preduslov da je poznata verovatnoća raspada – konstanta radioaktivnog raspada λ , ili sa njom direktno povezan period polu-raspada T:

$$A = N\lambda = N\frac{\ln 2}{T}$$
(2.1)

Gama-spektrometrijska metoda se dominantno zasniva na upotrebi visoko rezolucionih poluprovodničkih detektora najčešće kristala germanijuma visoke radiočistoće (HPGe) planarnog, koaksijalnog tipa ili u obliku jame [36, 37]. Metoda podrazumeva sledeće procedure:

- ➢ priprema uzoraka,
- kalibracija efikasnosti,
- merenje i obrada podataka i

izveštavanje o rezultatima merenja.

Kako bi uzorak bio reprezentativan, uzorkovanje mora zadovoljiti čitav niz specifičnih zahteva radi obezbeđivanja komparativnosti rezultata merenja, koja se vrše u različite svrhe. Za pojedine tipove uzoraka iz prirodne sredine, u literaturi postoji čitav niz detaljno razrađenih protokola uzorkovanja [38].

Pripremu uzorka za merenje treba tretirati kao izvor moguće greške, koja kasnije ne može biti eliminisana ni najpažljivijim merenjem na pouzdanom detektoru/spektrometru. U tom smislu imaju prednost nativni uzorci, ako je koncentracija aktivnosti radionuklida dovoljno velika, odn. ako je granica detekcije instrumenta dovoljno niska. Kod čvrstih uzoraka koji sadrže mnogo vode, znatno koncentrisanje se može postići već samim sušenjem na 105°C, što neće poremetiti sadržaj nijednog prirodnog radionuklida, osim tricijuma i radona. Kako i najjednostavnija priprema voluminoznih uzoraka pretpostavlja homogenizaciju, dakle, mrvljenje, sprašivanje, mešanje, radon ne može ostati u potpunoj ravnoteži sa radioaktivnim nizom ni u kom slučaju. Ipak, naknadna ravnoteža se može postići hermetičkim zatvaranjem uzorka pre merenja na vreme od oko 10 poluživota, što za ²²²Rn iznosi oko 40 dana.

Merenja niskih aktivnosti u prirodnim uzorcima zahtevaju adekvatnu zaštitu detektora od pozadinskog zračenja okoline i dobro poznavanje efikasnosti detektora za uzorke velike zapremine. Pod pozadinskim zračenjem ili fonom podrazumeva se kosmičko zračenje, prirodni i veštački radionuklidi u neposrednoj okolini detektora, ali i u samom materijalu detektora. Zaštita koja se koristi da bi se snizio fon može biti pasivna (sloj teških metala sa velikim rednim brojem Z radi što jače atenuacije gama zračenja određene debljine) ili aktivna (detektori u koincidentnom ili antikoincidentnom režimu rada sa osnovnim detektorom), dok najbolji sistemi zaštite podrazumevaju kombinaciju ova dva tipa zaštite. Pasivna zaštita se često oblaže sa tankim unutrašnjim slojevima metala koji umanjuju backscattering efekat – npr. sloj bakra i kalaja koji apsorbuju X zračenje nastalo u interakciji ambijentalnih fotona sa materijalom zaštite, npr. olovom. Uzorak se postavlja unutar zaštite na odgovarajućem rastojanju od detektora u zavisnosti od geometrije uzorka i očekivane brzine brojanja.

2.1 Gama-spektrometrijski sistemi

Poluprovodnički detektor hlađen tečnim azotom, niskofonska zaštita, visoki napon i električni moduli neophodni za procesuiranje signala (predpojačavač, linearni pojačavač, analogno digitalni konvertor ADC, višekanalni analizator MCA), PC računar za snimanje i vizuelizaciju podataka, kao i odgovarajući softverski paket za obradu spektara i proračun aktivnosti čine jedan savremen niskofonski gama-spektrometarski sistem. U ovakvom spektrometarskom sistemu fotoni emitovani iz uzorka interaguju sa kristalom germanijuma i proizvode signale. Amplituda signala je proporcionalna energiji fotona apsorbovanih u Ge i svaki signal se pojačava, uobličava i sortira prema visini kako bi se dobio spektar upadnih fotona (odbroj po jedinici energije). Ukoliko je sistem kalibrisan na osnovu energije signala mogu se identifikovati radionuklidi i odrediti njihova gama aktivnost (u bekerelima Bq).

I pored jednostavnosti pripreme uzorka postoji niz korekcionih faktora koji se moraju uzeti u obzir prilikom gama-spektrometrijskih merenja: gubitak signala usled pile-up efekta (za velike brzine brojanja), koincidentno sumiranje (i slučajno i kaskadno), korekcija na raspad izvora, atenuacija fotona usled interakcije sa izvorom i sl.



Slika 2.1 Blok šema osnovnog gama spektrometarskog sistema [40]

Nuklearna elektronika se danas proizvodi u obliku standardizovanih NIM modula (*Nuclear Instrumentation Module*) u pogledu dimenzija i napajanja (slika2.2). Kola za osnovnu obradu signala, kao što su pojačivač, diskriminator itd., prave se u odvojenim modulima sa standardizovanim mehaničkim i električnim specifikacijama. Na ovaj način su veoma praktični jer mogu da se povezuju po želji, i tako kreiraju razne merne konfiguracije upotrebom istog seta modula. Uz to, pošto su fizičke i električne specifikacije standardizovane u celom svetu, moduli iz različitih laboratorija mogu da se razmenjuju jer su kompatibilni.



Slika 2.2 NIM modularna elektronika 42

Osnovna uloga predpojačavača (*Preamplifier*) je da pojača slabe signale iz detektora nastale u interakciji sa gama zračenjem i da ih sprovodi do pojačavača uz dodavanje što manje šuma. Zbog toga je lociran neposredno uz detektor i obezbeđuje spoj visoke impedance sa detektora i niske impedance koaksijalnih kablova koji vode do pojačavača koji može biti daleko distanciran od detektora. Najčešće su u upotrebi predpojačivači osetljivi na naelektrisanje (*charge sensitive*) sa RC povratnom spegom (*resistive feedback*) koji skidaju naelektrisanje sa kondenzatora i pripremaju ulaz za sledeće signale. Na taj način se formiraju naponski signali sa amplitudom koja odgovara upadnoj energiji i repom čije je vreme opadanja relativno dugo u odnosu na vreme porasta (slika 2.3). Moderni predpojačavači koriste optičku povratnu spregu (*optical feedback*) koja povećava širinu signala i smanjuje šum.



2.3 Oblik izlaznog signala sa RC feedback perdpojačavača [44]

Pojačavač (*Amplifier*) služi za pojačavanje i oblikovanje signala pri čemu održava proporcionalan odnos visine signala između ulaza i izlaza (linearan pojačavač). Oblikovanje signala do uskih optimalnih oblika sa najmanjim uticajem šuma je neophodna priprema za dalju analizu signala po visini u diskriminatoru i pojačavač za visokorezolucionu spektrometriju treba da obezbedi sledeće performanse: pol-nula otkazivanje (pole-zero cancellation), restauracija nule (baseline restoration), a takođe i odbacivanje pile-up efekta - nagomilavanja signala (naredni signal jaše na repu prethodnog signala). Najrasprostranjeniji način oblikovanja signala je filtriranje signala po niskim i visokim frekvencijama uzastopnim prolaskom signala kroz CR diferencijator i RC integrator. Optimum se postiže za jednake konstante diferencijacije i integracije i podešavanjem vremenskih konstanti. na spektroskopskim pojačavačima.

Jedan od neželjenih efekata kod RC oblikovanja signala je pojava podbacivanja signala ispod nule *("undershoot")* koji se veoma sporo vraća na nulu. Problem predstavlja sledeći signal koji se superponira na njega i kreira amplitudni defekt, vrednost za koliko se amplituda pokazuje manjom. Ovaj problem se otklanja u pol-nula kolu za otkazivanje, tj. promenjivim otpornikom vezanim paralelno sa kondenzatorom u CR kolu (slika 2.4) [41].

I pored ove ispravke mogu se pojaviti undershoot-ovi koji iako su mali višestruko se nagomilavaju. Zbog ovoga sama osnovna linija (baseline) fluktuira (slika broj 2.6) [41]. Ovo otklanjaju dodatna kola koja se nadovezuju na izlaz, koja restauriraju osnovnu liniju (*baseline restoring*) koja skraćuje vreme nestajanja undershoot-a tako što se kondenzator uzemlji odmah nakon prolaska signala.



Slika 2.5 Pol-nula otkazivanje nule [41]



Problem pile up – a ili slučajnih koincidencija gde se dva ili više gama zraka detektuju simultano usled toga što upadaju u istu širinu izlaznog signala sa pojačavača i ne mogu da se razdvoje kao različiti događaji se otklanja tako što se paralelno sa normalnim oblikovanjem signala povezuje grana sa brzim diferencijatorom i diskriminatorom koji stvara logičke signale za sprečavanje analize pile up impulsa (slika 2.7).



Slika 2.7 Blok šema pojačavača za gama-spektrometrijske sisteme – levo; Princip rada sistema za odbacivanje pile-up-a u spektroskopskom pojačavaču – desno [37]

Na slici 2.8 se može videti na koji način kolo za odbacinje pile-up (pile up rejection – PUR) doprinosi kvalitetu gama spektra ⁵⁷Co za velike brzine odbroja (50 kcounts/s).



Slika 2.8 Spektar ⁵⁷Co na 50 kcps i 4 ms shaping [42]

Analogno-digitalni konvertor (*Analogue-to-digital converter*) ADC je uređaj koji transformiše informaciju u formi analognog signala u odgovarajući digitalni broj – meri maksimum amplitude analognog ulaznog signala i pretvara izmerenu vrednost u digitalni broj. Na osnovu dva mehanizma konvertovanja signala razlikujemo Wilkinson-ov ADC i ADC sukcesivnih aproksimacija.

Višekanalni analizator (*Multi channel analyser*) MCA razvrstava i sortira dobijene digitalne brojeve iz ADC-a po odgovarajućim adresama, odnosno kanalima tako što uzima ovaj broj i pravi kanal u memoriji čija adresa je proporcionalna digitalnoj vrednosti visine impulsa, i broji pristigle impulse te visine. Na ovaj način ulazni impulsi se sortiraju u memoriji prema visini i odbroju na datom kanalu. Ukupan broj kanala, tj. stepen konverzije (*conversion gain*), predstavlja rezoluciju MCA. MCA za germanijumske sisteme sadrži 4096 kanala (4K rezolucija), 8192 kanala (8 K rezolucija) ili 16384 (16 K) kanala. Ako stepen konverzije odgovara 0,25 keV/kanalu tada se koristi 8 K MCA, pri čemu se pokriva energetski region od 0 do 2000 keV. Svaki kanal ima kapacitet da snimi najmanje 106 signala.



Slika 2.9 Integralna linearnost kao odstupanje od idealnog odgovora (visina signala / broj kanala) – levo; Diferencijalna linearnost – mera stalnosti širine kanala – desno [37]

Idealan odgovor ADC-a bi bila strogo linearna zavisnost visine ulaznih signala od broja kanala u koje se smešta digitalni odbroj koji odgovara visini signala. Mera odstupanja od ove linearnosti kod komercijalnih ADC-a se može predstaviti u obliku integralne i diferencijalne linearnosti (slika 2.9)



Slika 2.10 Blok šema višekanalnog analizatora MCA

Na slici broj 2.10 data je šema MCA, gde se vidi da suštinu analizatora čini ADC konverter. Da bi se u njemu obezbedilo brže konvertovanje analognog u digitalni signal, obično se prethodno signal oblikuje u selektivnom pojačavaču ili pomoću proširivanja impulsa, da bi ulazni signal imao što bolje karakteristike širine signala i vremena porasta. Pored memorije, razni modeli dodatno kombinuju i diskriminator ili SCA (jednokanalni analizator – *Single channel analyser*), linearnu kapiju (*linear gate*), LT merač (*live time meter*), ili čak mikroprocesor za korišćenje podataka u memoriji. Vreme kada sistem nije dostupan za procesuiranje signala naziva se mrtvo vreme DT (*dead time*) i predstavlja razliku realnog pravog vremena RT (*real time*) i živog vremena LT (*live time*):

$$DT = RT - LT \tag{2.2}$$

Brojanje LT i RT je omogućeno dodatnim kolom ispred ADC-a, tzv. ulaznom kapijom (*input gate*) koja je zatvorena kada je ADC zauzet procesuiranjem signala (slika 2.11).





Savremeni gama-spektrometarski sistemi su opremljeni i sa stabilizatorima spektra koji mogu biti analogni za niskorezolucione sisteme i digitalni za visokorezolucione sisteme i koji otklanjaju smetnje od svih elektronskih komponenata od detektora do MCA nastale usled temperaturske varijacije i promene brzine brojanja.

Kvalitet gama spektrometarskog sistema se izražava preko granice detekcije, a to je najniža aktivnost koja se može detektovati za dati radionuklid prisutan u ispitivanom uzorku. Faktori koji utiču na granicu detekcije su:

- efikasnost detektora izražena kao osetljiva zapremina kristala detektora,
- količina uzorka koja se može postaviti neposredno uz detektor,
- faktor redukcije fona i
- vreme merenja uzorka.

Kod određivanja efikasnosti detektora za uzorke velike zapremine izvestan problem predstavlja atenuacija γ -zraka u materijalu uzorka pre no što stigne do detektora. Ovo je posebno izraženo na niskim energijama gama-zraka (<100 keV), jer je koeficijent atenuacije za takve zrake relativno veliki. Standardni postupak kalibracije efikasnosti tada podrazumeva da kalibracioni izvor ima istu geometriju i isti elementarni sastav kao uzorci kojima će biti određivana aktivnost. Standardnu geometriju uzorka lako je održavati, međutim, za uzorke koji se razlikuju po sastavu, trebalo bi imati seriju kalibracionih izvora odgovarajućeg sastava, što je praktično nemoguće. Stoga se pribegava računskoj korekciji efikasnosti detektora preko tzv. efektivnog prostornog ugla. Od velikog je značaja upoređivanje metodologije rada i rezultata merenja pojedinih laboratorija, koje se najefikasnije ostvaruje postupkom interkomparacije spektrometara na standardizovanim uzorcima sa istim specifičnom aktivnošću radionuklida, dobijenim deljenjem homogenizovanog uzorka odgovarajućeg sastava i nivoa aktivnosti.

2.2 Oblik i komponente gama spektra

Primarni koncept gama spektrometrije je odrediti energiju i broj upadnih fotona. Spektar fotona nekog izvora sastoji se od neizbežnog spektralnog kontinuuma i diskretnih linija male širine. Istaknuta komponenta je vrh totalne apsorpcije (*full energy peak*) koji nastaje kada upadni foton celokupnu energiju ostavi u detektoru i zbog toga daje korisnu informaciju. Količina energije deponovana u materijalu apsorbera (tj.detektora) će biti jednaka energiji fotona samo u sledećim slučajevima:

- fotoelektrični efekat u kristalu detektora X zraci atoma detektora koji se emituju usled preuređenja elektronskih omotača nakon emisije fotoelektrona moraju biti apsorbovani u kristalu. Oni koji izbegnu apsorpciju (*eng. escape*) doprinose vrhovima izbegavanja X zraka (X ray escape peak) na spektralnom kontinuumu (slika 2.12) – vrhovi izbegavanja X zraka igraju značajnu ulogu kod Ge detektora samo na energijama manjim od 50 keVa,
- > jedno ili više sukcesivnih Komptonovih rasejanja praćeno fotoelektričnim efektom;
- proizvodnja para elektron-pozitron praćeno fotoelektričnom apsorbcijom oba anihilaciona fotona kojima može prethoditi jedno ili više Komptonovih rasejanja.

Kod visokoenergetskih fotona (E > 1022 keV) dolazi do stvaranja parova i emitovanja anihilacionih fotona od 511 keV-a. Neki od anihilacionih fotona mogu izaći iz zapremine detektora i na taj način izbeći detekciju. Pošto nije moguće razlikovati dva fotona nastala anihilacijom pozitrona, mogući su sledeći scenariji [43]:

- > oba anihilaciona fotona su totalno apsorbovana što odgovara vrhu pune energije;
- samo jedan anihilacioni foton je apsorbovan dok je drugi izbegao iz detektora vrh jednostrukog izbegavanja (*single escape event*) i
- nijedan od dva fotona nije totalno apsorbovan vrh dvostrukog izbegavanja (double escape event).



Slika 2.12 Detekcija fotona u Ge kristalu detektora i veza događaja sa gama spektra [43]:
1 - Fotoelektrični efekat, 2- Proizvodnja para, 2_{bis}- Anihilacija, 3 – Komptonovo rasejanje,
4- Izbegavanje X_{Ge}, 5 – Jednostruko izbegavanje, 6 – Dvostruko izbegavanje, 7 – Komptonovo rasejanje: backscattering sa izbegavanjem rasejanog fotona, 8 – Spoljašnje Komptonovo rasejanje – detekcija rasejanih fotona, 9 – Spoljašnje Komptonovo rasejanje – backscattering,
10 – Komptonovo rasejanje sa delimično prikupljenim upadnim fotonom, 11- X Fluorescencija materijala zaštite, 12 – Detekcija elektrona iz izvora, 13 - Detekcija fotona od 511 keV-a – proizvodnja para u materijalu zaštite (ako je E>1,022 MeV)

Dok fotoelektrični efekat dominira na niskim energijama, Komtonovo rasejanje je najčešći proces u kristalu Ge u energijskom intervalu od 150 keV do 9 MeV. Oni komptonski rasejani fotoni čija se energija apsorbuje u detektoru doprinose kontinualnoj raspodeli koja se proteže od nulte energije do pune energije (slika br. 2.12).

Fotoni emitovani iz izvora interaguju sa materijalima u neposrednoj okolini detektora, npr sa materijalom zaštite (slika br. 2.12). Rezultujući sekundarni fotoni, tj. X zraci, komptonski rasejani elektroni i anihilacioni kvanti mogu dopreti do kristala i tako doprineti merenom spektru. Posledica fotoelektričnog efekta je pobuđeni atom koji emituje karakteristične X zrake. Zato se u spektru mogu uočiti K i/ili L X zraci iz olovne zaštite ili kolimatora, iz zlatnog kontaktnog sloja na kristalu i iz elemenata iz matriksa uzorka. Komptonski rasejani fotoni iz materijala u neposrednoj okolini detektora imaju energije u intervalu od $E/(1+2E/m_0c^2)$ i E, u zavisnosti od ugla rasejanja. Preovlađuju fotoni rasejani unazad (retro diffusee – na slici) i proizvode vrh povratnog rasejanja blizu donje granice energetskog intervala. Za fotone visoke energije anihilacioni kvanti koji prate proizvodnju parova u okolnim materijalim doprinose vrhu na 511 keV-a. Doprinosi ovom vrhu nastaju i anihilacijom pozitrona u beta+ raspadu ispitivanog radionuklida.

2.3 Kalibracija efikasnosti i energetska kalibracija

Kod primene gama spektrometrije u monitoringu radioaktivnosti životne sredine potrebno je odrediti koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorcima velike zapremine (odnosno) mase kako bi se postigla zadovoljavajuća preciznost za razumno dugačko vreme merenja. Obično su u pitanju raznovrsni uzorci različitih geometrija i matrica. Na početku merenja neophodno je izvršiti kalibraciju efikasnosti detekcije za svaki detektor i svaku geometriju posebno. Efikasnost detekcije za datu geometriju uzorka, pri tom zavisi i od svojstava uzorka, njegove gustine i elementarnog sastava.

Energetski opseg za većinu prirodnih i antropogenih radionuklida u životnoj sredini koji su predmet ispitivanja iznosi od 30 - 3000 keV-a. Kalibracija efikasnosti za datu vrstu uzorka predstavlja dobijanje kontinualne krive efikasnosti za pomenuti region.

Postoje razne procedure za određivanje efikasnosti detekcije [37] koje se najčešće moraju kombinovati. Eksperimentalni pristup se zasniva na izmerenom spektru kalibracionog izvora koji emituje gama zračenje u energetskom intervalu od interesa. Poznate aktivnosti radionuklida kalibracionog izvora omogućavaju određivanje efikasnosti na energijama iz snimljenog spektra:

$$\varepsilon = \frac{R}{A \cdot p_{\gamma}} \tag{2.3}$$

gde je R srednja brzina brojanja pod vrhom pune energije i p_{γ} verovatnoća emisije odgovarajućih gama zraka. Problemi sa kojima se susreće ovaj pristup u kalibraciji efikasnosti su sledeći: iako se prave kalibracioni izvori različitih oblika za veliki broj radionuklida praktično je nemoguće uvek ispoštovati zahtev da uzorak i kalibracioni izvor budu identični po svojoj gustini i sastavu – što implicira i uvođenje matematičkih korekcija u eksperimentalnu proceduru.

Energetski region od 30 – 3000 keV-a se mora popuniti linijama iz spektra kalibracionog izvora, što je nemoguće postići jednim kalibracionim izvorom. Takođe je poželjno da radionuklidi u kalibracionom izvoru emituju monoenergetske fotone u suprotnom se javljaju koincidentna sumiranja kada gama zraci nastali kaskadnim prelazima istovremeno oslobode svoju energiju u kristalu detektora. U tom slučaju je neophodno koristiti korekcije na koincidentno sumiranje što predstavlja dodatnu komponentu nesigurnosti krive efikasnosti.

Kriva efikasnosti izražava se u obliku [43]:

$$\ln \varepsilon = \mathbf{a}_0 + \mathbf{a}_1 \ln \mathbf{E}_{\gamma} + \mathbf{a}_2 \ln^2 \mathbf{E}_{\gamma} + \mathbf{a}_3 \ln^3 \mathbf{E}_{\gamma} + \mathbf{a}_4 \ln^4 \mathbf{E}_{\gamma} + \mathbf{a}_5 \ln^5 \mathbf{E}_{\gamma} , \qquad (2.4)$$

gde je ε efikasnost na energiji E_{γ} , a a_0 , ..., a_5 su numerički koeficijenti određeni prilagođavanjem krive eksperimentalnim parovima vrednosti $\varepsilon(E_{\gamma})$ metodom najmanjih kvadrata sa otežinjenjem.

Kod određivanja efikasnosti detekcije za voluminozne izvore izvestan problem predstavlja atenuacija gama zraka u materijalu izvora pre nego što stigne do detektora [44]. Ovo je naročito izraženo na niskim energijama gama zraka jer je koeficijenat atenuacije za takve zrake relativno veliki. Takođe bi trebalo odrediti optimalnu visinu cilindričnog uzorka sa fiksnim dijametrom jer je efekat samoapsorpcije u rasprostranjenim izvorima izraženiji sa povećanjem njihove visine. Kalibracioni izvori, kao i mereni uzorci moraju biti što homogenijeg sastava kako bi doprinos aktivnosti od svih tačaka njihove zapremine bio što ravnomerniji te se i na ovaj načinpostiže njihova sličnost u smislu ravnomerne prostorne distribucije radionuklida.

Suprotan pristup se zasniva na izračunavanju efikasnosti pomoću Monte Carlo simulacija ponašanja svakog pojedinačnog fotona. Svaki foton se prati na svom putu od tačke emisije u izvoru, kroz izvor do detektora i unutar detektora. Foton interaguje preko fotoelektrične apsorpcije, Komtonovog rasejanja ili proizvodnje parova, pri čemu nastaju elektroni, pozitroni i sekundarni fotoni koji se dalje takođe prate kroz detektor. Da bi se dobio celokupan bilans interakcija, u svakoj tački se primenjuju verovatnoće svih vrsta interakcija za svaki mogući ugao rasejanja. Ako čestica napušta detektor praćenje se zaustavlja. Ulazne informacije potrebne za Monte Karlo simulacije su sledeće:

- dimenzije izvora i rastojanje od detektora,
- > dimenzije kape detektora i osetljivih i neosetljivih zona u detektoru,
- > elementarni sastav i gustina svih materijala kroz koje fotoni prolaze,
- > atenuacioni koeficijenti svih materijala,
- verovatnoće svih relevantnih interakcija fotona u materijalu detektora u funkciji od energije i ugla skretanja i
- > informacija o transportu elektrona i pozitrona kroz materijal detektora.

Rezultati savremenih Monte Carlo programa daju efikasnosti detekcije sa nesigurnostima uporedivim sa eksperimentalnim kalibracijama koje se susreću sa različitim neophodnim matematičkim korekcijama. Nedostatak ovog pristupa je nemogućnost poznavanja svih relevantnih podataka ili znatno poskupljenje samog uređaja ukoliko se naruči takav detektor sa pouzdanim podacima.

Najčešće korišćen metod za kalibraciju efikasnosti se zasniva na izračunavanju efektivnog prostornog ugla za uzorke različitih geometrija i sastava. Prvi put je ovakva metoda

razvijena za koaksijalne detektore i cilindrične uzorke [45], a kasnije je proširena i na cilindrične uzorke sa dijametrima većim od dijametra kristala detektora. Ovakav metod je eksperimentalno testiran i za tačkaste izvore, izvore u obliku diska, cilindrične izvore na različitim rastojanjima za veliki broj detektora i slaganje eksperimentalnih i proračunatih vrednosti je dobijeno u okviru 3% kada su parametri detektora bili dobro poznati.

Za određivanje energetske kalibracije (zavisnost energija/broj kanala) snima se spektar tačkastog izvora ¹⁵²Eu na gama-spektrometru koji se etalonira. Izvor europijuma ¹⁵²Eu je podesan jer ima veliki broj linija i pokriva opseg od 50 – 2000 keV-a. Pojačanje sistema se podešava tako da se sve emitovane gama linije mogu uočiti u spektru. Vreme merenja se bira tako da statistička greška u površinama linije bude manja od 1%. Zabeleže se kanali na kojima se nalaze centroide totalne apsorpcije gama linija sa energijama navedenim u Tabeli br.2.1 [46]

	Energija [keV]	Apsolutni gama intenzitet [%]
1.	121.78	28.4
2.	244.69	7.51
3.	295.94	0.440
4.	344.28	26.6
5.	367.79	0.858
6.	411.12	2.23
7.	586.29	0.461
8.	688.68	0.849
9.	778.90	12.98
10.	810.46	0.318
11.	841.59	0.162
12.	867.39	4.21
13.	919.40	0.435
14.	1005.28	0.647
15.	1085.91	9.94
16.	1089.70	1.71
17.	1212.95	1.40
18.	1299.12	1.63
19.	1408.01	20.8
20.	1457.63	0.496

Tabela 2.1 Energije najintenzivnijih gama linija ¹⁵²Eu i njihovi apsolutni gama intenziteti

Na osnovu ovih podataka se svakom kanalu c pridružuje određena energija i konstruiše se kriva E=f (c). Kalibraciona kriva gama spektrometra se izražava u obliku:

$$\mathsf{E}_{\gamma}(\mathsf{c}) = \mathsf{e}_0 + \mathsf{e}_1 \mathsf{c} + \mathsf{e}_2 \mathsf{c}^2, \qquad (2.5)$$

gde je c - redni broj kanala višekanalnog analizatora, a e_0 , e_1 i e_2 su numerički koeficijenti dobijeni fitom eksperimentalne zavisnosti E_{γ} (c) metodom najmanjih kvadrata.

2.4 Gama-spektrometarski sistemi u Laboratoriji

Spektrometar sa oznakom L je poluprovodnički HPGe detektor proizvođača ORTEC model LLB-GMX-HJ.

Oznaka LLB predstavlja detektor sa komponentama koje okružuju poluprovodnički kristal Ge tako odabranim da im je sadržaj radionuklida znatno manji nego kod običnih materijala, što je vrlo značajno za postizanje niskog nivoa zračenja iz okoline detektora.

GMX označava da je detektor sa spoljašnjim kontaktom n-tipa, koji sadrži jonski implantiran B i ima debljinu 0.3 μ m, tako da je kao pasivni apsorber γ zraka sasvim zanemarljiv. Zahvaljujući tome, ovakvi detektori imaju mnogo veću efikasnost na niskim energijama gde su atenuacioni koeficijenti veliki, pa se mogu koristiti i za spektrometriju X-zraka i niskoenergijskih γ zraka.

Da bi se ovo moglo iskoristiti, ulazni prozor na kućištu je napravljen od Be debljine 0.5mm, koeficijenta transparencije \approx 95% na 5.9 keV. Mogućnost merenja na sasvim niskim energijama u rutinskim eksperimentima koristi se vrlo retko, tako da je kućište detektora sa frontalne strane, preko prozora, stalno pokriveno plastičnim poklopcem koji štiti inače vrlo osetljivi Be-prozor. Ipak ovaj detektor je mnogo osetljiviji na γ zrake ispod 100 keV od standardnih HPGe detektora sa spoljašnjim kontaktom p-tipa.

Unutrašnji kontakt ovog detektora je sloj u koga je difundovan Li, debljine 0.9mm, tako da u ovom slučaju pri proračunu efikasnosti mora voditi računa o atenuaciji u jezgru detektora.

Specifikacija proizvođača u ovom slučaju sadrži sve relevantne dimenzije detektora i kućišta. Najvažniji parametri detektora L izlistani su u Tabela 2.2

Visoki napon za ovaj detektor dobija se iz izvora ORTEC Model 659. Signali iz predpojačavača vode se na spektroskopski pojačavač ORTEC Model 672, a zatim na višekanalni analizator Canberra Multiport II. Ovaj je preko USB porta priključen na standardni PC, sa operativnim sistemom Windows XP. Upravljanje sakupljanjem podataka i on-line praćenje spektara u formatu Canberra *.CNF vrši se pomoću programa Canberra Genie2000, verzija 2.1.



Slika 2.13 Gama-spektrometarski sistem sa internom oznakom L

Zaštita od zračenja okoline kod ovog detektora sastoji se od šupljeg cilindra od niskoaktivnog olova, unutašnjeg prečnika od 22cm, a spoljašnjeg od 50cm, domaće izrade. Sa unutrašnje strane postavljena je obloga od Cu debljine 1mm i od Sn debljine 2mm, radi apsorpcije fluorescentnih X-zraka od olova. Oznaka HJ predstavlja kriostat sa produženim vratom detektora, koji omogućava da se sam detektor smesti u olovnu zaštitu na takav način da su zaštitna komora i kontejner za tečni azot u istom nivou. Osa detektora je vertikalna. Komora se trajno ispira gasovitim azotom koji nastaje isparavanjem tečnog azota u kontejneru, tako da je nivo radona u komori vrlo nizak. Zaštitna olovna komora je opkoljena sa strane i od gore sa ukupno 5 plastičnih scintilacionih veto detektora vezanih u koincidentno kolo sa Ge detektorom, čime se postiže dodatno smanjenje uticaja zračenja okoline. Integralna brzina brojanja zračenja okoline u intervalu 30 keV do 3000 keV za detektor L je 0.7 s⁻¹.

Proizvođač	ORTEC
Model	LLB-GMX-HJ
Godina proizvodnje	1999
Geometrija	koaksijalni sa zatvorenim krajem
Orijentacija ose detektora	vertikalna
Radna temperatura [K]	77
Radni napon [kV]	- 2.5
Spoljašnji kontakt	0.3 µm Ge(B)
Unutrašnji kontakt	0.9 mm Ge(Li)
Ulazni prozor	0.5 mm Be
Prečnik kristala [mm]	56
Visina kristala [mm]	65.2
Aktivna zapremina kristala detektora	155
[cm ³]	
Poluprečnik jezgra [mm]	4.6
Visina jezgra [mm]	57.1
Debljina kućišta	1.3 mm Al
Relativna efikasnost	32%
Rezolucija na 1332 keV	
HWHM, HWTM [keV]	1.8, 3.4
Odnos P/T	57

Tabela 2.2. Najvažniji parametri poluprovodničkog detektora L

Spektrometar sa oznakom M je poluprovodnički HPGe detektor proizvođača Canberra model GC2520-7600.

Ovaj detektor je standardnog tipa: spoljašnji kontakt je napravljen difuzijom Li tako da čini n⁺-sloj debljine od oko 0.6 mm. Ovaj sloj je neaktivan i figuriše samo kao apsorber γ -zraka. Unutrašnji p⁺-kontakt dobija se nanošenjem vrlo tankog sloja Au na zidove šupljine dobijene uklanjanjem jezgra kristala Ge. Stoga se može smatrati da atenuacije γ -zraka pri prolazu kroz jezgro detektora nema.

Nažalost, specifikacija proizvođača ovog detektora ne sadrži dimenzije šupljeg jezgra detektora, pa se za proračune efikasnosti koriste dimenzije šupljine kakve se kod detektora približno iste veličine kristala mogu naći u literaturi. Kućište detektora je od Al debljine 1.5mm, dok je ulazni prozor prema frontu detektora debljine 0.5mm. Vrat detektora je po uglom od 90°, tako da je osa detektora horizontalna.

Najvažniji parametri detektora M izlistani su u Tabela 1.3

Proizvođač	Canberra
Model	GC2520-7600
Godina proizvodnje	1988, opravljen 2002
Geometrija	koaksijalni sa zatvorenim krajem
Orijentacija ose detektora	horizontalna
Radna temperatura [K]	77
Radni napon [kV]	4.0
Spoljašnji kontakt	0.6mm Ge(Li)
Unutrašnji kontakt	1 μm Au
Ulazni prozor	0.5 mm Al
Prečnik kristala [mm]	51
Visina kristala [mm]	58.5
Aktivna zapremina kristala detektora [cm ³]	110
Poluprečnik jezgra [mm]	4.6
Visina jezgra [mm]	38
Debljina kućišta	1.5 mm Al
Relativna efikasnost	25%
Rezolucija na 1332 keV	
HWHM, HWTM [keV]	1.8, 3.3
Odnos P/T	56

Tabela 1.3 Najvažniji parametri poluprovodničkog detektora M

Visoki napon za ovaj detektor dobija se iz izvora Canberra Model 3105. Signali iz predpojačavača Canberra Model 2002CSL vode se na spektroskopski pojačavač Canberra Model 2021, a zatim na #1 ulaz od 16384 kanala višekanalnog analizatora Canberra Multiport I sa ADC-om. Ovaj je preko USB porta priključen na standardni PC, sa operativnim sistemom Windows XP. Upravljanje sakupljanjem podataka i on-line praćenje spektara u formatu Canberra *.CNF vrši se pomoću programa Canberra Genie2000, verzija 2.1.

Zaštitu od zračenja iz okoline kod ovog detektora predstavlja komora od čeličnih ploča livenih pre II Svetskog rata, tako da u njima nema veštački proizvedih radionuklida. Unutrašnja korisna zapremina komore je $1m \times 1m \times 1m$, dok je debljina zidova i pokretnih vrata 25cm. Prednost ove komore u odnosu na olovnu je u nepostojanju fluorescentnih X-zraka iz olova. Nedostatak je velika zapremina iz koje se teško ispira radon. Kontejner za tečni azot je u komori zajedno sa detektorom, tako da i aktivnost radionuklida u njemu doprinosi zračenju koje iz okoline ulazi u detektor. Integralna brzina brojanja zračenja okoline u intervalu 30 keV do 3000 keV za detektor M je 1.7 s⁻¹.



Slika 2.14 Gama-spektrometarski sistem sa oznakom M

Spektrometar sa oznakom K je poluprovodnički HPGe detektor proizvođača Canberra model GC3518.

I ovaj detektor je standardnog tipa: spoljašnji kontakt je n^+ -sloj debljine od 0.9mm, dok je unutrašnji + kontakt tanak sloj Au.

Specifikacija proizvođača ovog detektora sadrži sve relevantne dimenzije detektora. Kućište detektora je od Al debljine 1.5mm, a ista je debljina ulaznog prozora prema frontu detektora. Za hlađenje ovog detektora se koristi manji kontejner za tečni azot, koji omogućava prenosivost detektora. Tako osa detektora može biti orijentisana ili horizontalno ili vertikalno.

Najvažniji parametri detektora K izlistani su u Tabela 2.4

Proizvođač, godina proizvodnje	Canberra, 2005
Model, serijski broj	GC3518, 05110
Pretpojačavač, kriostat	2002CSL, 7935SL-7
Geometrija	koaksijalni sa zatvorenim krajem
Orijentacija ose detektora	proizvoljna, u Pb zaštiti vertikalna
Radna temperatura [K]	77
Radni napon [kV]	4.5
Spoljašnji kontakt	0.9 mm Ge(Li)
Unutrašnji kontakt	0.3 μm Au
Ulazni prozor	1.5 mm Al
Prečnik kristala [mm]	61
Visina kristala [mm]	52
Poluprečnik jezgra [mm]	9.0
Visina jezgra [mm]	34
Debljina kućišta	1.5 mm Al
Relativna efikasnost nominalna, sertifikovana	35%, 35.6%
Rezolucija na 1332 keV	
HWHM, HWTM [keV]	1.77, 3.29
Odnos P/T	63.2

Tabela 2.4. Najvažniji parametri poluprovodničkog detektora K



Slika 2.15 Gama-spektrometarski sistem sa oznakom K 57

Detektor K povezan je na modul za digitalnu obradu signala (DSP) InSpector 2000 Model 1300 proizvođača Canberra, koji obezbeđuje i visoki napon potreban za rad detektora. DSP modul se napaja jednosmernim naponom iz ispravljača, a u toku rada održava u napunjenom stanju litijum jonsku bateriju, koja omogućava rad detektora i modula na terenu, ili u slučaju nestanka napajanja iz mreže. Preko USB porta DSP modul je povezan na Notebook PC Dell Latitude 610, sa operativnim sistemom Windows XP. Upravljanje funkcijama DSP modula omogućeno je pomoću programa Canberra Genie 2000 v. 3.0 instaliranog na ovom kompjuteru, uključujući upravljanje visokim naponom, sakupljanje, on-line praćenje i analizu spektara u formatu Canberra *.CNF.

Kada je detektor K u stacionarnoj primeni u laboratoriji, od zračenja okoline zaštićen je olovnom komorom oblika šupljeg cilindra unutrašnjeg prečnika 22cm i debljine zida 14cm. Osa detektora je tada vertikalna. Integralna brzina brojanja zračenja okoline u intervalu 30 keV do 3000 keV za detektor K je 2.0 s^{-1} .

Spektrometar sa oznakom B Spektrometar sa internom oznakom B je ultra niskofonski germanijumski detektor velike zapremine, proizvođača Canberra, godine proizvodnje 2007, tip GX10021, serijski broj b08093. Ima prošireni merni opseg od 6 keV do 3 MeV i nalazi se u originalnoj zaštiti od olova debljine 15 cm. Relativna efikasnost ovog detektora je 100% (ekvivalentno apsolutnoj efikasnosti 3"x 3" NaI(Tl) detektora na 1332 keV), što odgovara aktivnoj zapremini detektora od 380 cm³. Prednji prozor na kapi detektora je debljine samo 0,89 mm i napravljen je od kompozitnih uljanih vlakana visoke tvrdoće ali dobre transparentnosti, što obezbeđuje više od 85% transmisije za fotone energije iznad 15 keV-a i skoro 100% transmisije za fotone energije iznad 20 keV-a. Model kriostata je 7915-30-ULB, model predpojačavača 2002C Spektrometar je zatvorenog koaksijalnog tipa sa U kriostat konfiguracijom. Rezolucija na 1332 keV-a iznosi FWHM = 1.96 keV, odnos peak to Compton P/C=84.5.

Zaštita detektora je napravljena od slojevito spojenog olova. Spoljašnih 5 inča (125 mm) je obično niskofonsko olovo, dok je unutrašnji sloj od oko 1 inč (25 mm) olovo sadržaja ²¹⁰Pb od oko 20 Bq/kg. Pasivna zaštita ima unutrašnji sloj koji zaustavlja X zrake iz K nivoa energije od 75-85 keV. Presvučeni materijali su nisko-fonski kalaj debljine 1 mm i bakar visoke čistoće debljine 1.5 mm. X-zraci koji potiču iz sloja kalaja (od 25 -28 keV) su takođe redukovani bakrom.



Slika 2.16 Gama-spektrometarski sistem sa oznakom B

Zaštita je opremljena sa gasnim priključkom koji služi za uvođenje tečnog azota iz Dewar-a u unutrašnjost zaštite kako bi se snizio fon koji potiče od radona i radonovih potomaka. Ukupna masa zaštite iznosi 1633 kg. Redukcioni faktor fona za kompletni spektar (od 40 keV – 2768 keV) iznosi 238. Visoki napon za ovaj detektor dobija se iz izvora Canberra Model 3125 Dual. Signali se sa spektroskopskog pojačavača Canberra Model A 2026 vode na Canberra Multiport I sa ADC-om. Ovaj je preko USB porta priključen na standardni PC, sa operativnim sistemom Windows XP. Upravljanje sakupljanjem podataka i on-line praćenje spektara u formatu Canberra *.CNF vrši se pomoću programa Canberra Genie2000, verzija 2.1.

GLAVA 3. Promptno gama-spektrometrijsko određivanje uranijuma ²³⁸U u uzorcima iz životne sredine

3.1 Fizičke i hemijske karakteristike uranijuma. Osiromašeni uranijum

Uranijum je hemijski elemenat rednog broja Z=92 koji u svom prirodnom izotopskom sastavu sadrži 99.27% izotopa ²³⁸U, 0.72% izotopa ²³⁵U i 0.0055% izotopa ²³⁴U. Radioaktivni izotopi ²³⁸U i ²³⁵U se raspadaju preko složenog niza radioaktivnog raspada i sa nizom ²³²Th čine dominantni deo prirodne radioaktivnosti.

Izotop	obilnost [%]	tip raspada	Period poluraspada
²³⁸ U	99.2745 ± 0.0015	α	(4.468±0.005)x10 ⁹ godina
²³⁵ U	0.7200 ± 0.0012	α	(7.037±0.011)x10 ⁸ godina
²³⁴ U	0.0055 ± 0.0005	α	$(2.454\pm0.006) \times 10^5$ godina

Tabela 3.1 Izotopi uranijuma u prirodnom uranijumu

Izotop uranijuma ²³⁴U je član radioaktivnog niza ²³⁸U, ali ima ~10⁴ puta kraći period poluraspada tako da se u prirodnom uranijumu nalazi u sekularnoj ravnoteži sa dugoživećim rodonačelnikom ²³⁸U, te im se brzine raspada podudaraju, a time je određen i njihov izotopski odnos. Atom uranijuma se odlikuje velikim naelektrisanjem jezgra i složenom elektronskom konfiguracijom. Za uranijum je karakteristična visoka hemijska aktivnost. Lako reaguje sa kiseonikom obrazujući okside, takođe reaguje i sa ugljenikom, azotom, halogenim elementima i sumporom. U jedinjenjima se pojavljuje u oksidacionim stanjima +4 i +6. Šestovalentni uranijum u alkalnoj sredini obrazuje anjone uranata (UO₄)²⁻ i diuranata (U₂O₇)²⁻, dajući soli slabo rastvorne u vodi, dok u kiseloj i neutralnoj sredini ulazi u sastav kompleksnog jona uranila (UO₂)²⁺, dajući u vodi dobro rastvorljive soli i kompleksna jedinjenja četvorovalentnog uranijuma su po pravilu nerastvorljiva. Uranijumova jedinjenja se mogu razvrstati u sledeće grupe:

- okside (UO₂, U₃O₈) koji se koriste kao gorivni elementi, imaju visoku temperaturu topljenja i hemijski su inertni (UO₂ je rastvorljiv u vodi dok UO₃ nije);
- karbide (UC, UC₂, U_2C_3) nisu stabilni, reaguju sa kiseonikom i na sobnoj temperaturi su zapaljivi i

- fluoride (UF₄, UF₆) – UF₆ je jedino jedinjenje uranijuma koje se može podvrgnuti procesu obogaćivanja, jer je u gasovitom stanju na niskim temperaturama i fluor ima samo jedan stabilan izotop, pa se molekul ²³⁵UF₆ razlikuje od molekula ²³⁸UF₆ po masi. Pri sobnim temperaturama UF₆ isparava i reaguje sa vlagom iz vazduha gradeći fluorovodoničnu kiselinu:

$$UF_6 + 2H_2O \rightarrow UO_2F_2 + 4HF \tag{3.1}$$

Metalni uranijum se dobija redukcijom fluorida UF_4 i UF_6 kalcijumom ili magnezijumom, ima loša mehanička svojstva – krt je i oksidiše u kontaktu sa vazduhom.



Slika 3.1 Komadi metala uranijuma – levo; komadi osiromašenog uranijuma presvučeni tamnim oksidom- desno

Pri zahvatu termalnih neutrona nuklearnoj fisiji u procesu lančane reakcije podložan je samo uranijum ²³⁵U, pa on predstavlja izotop od interesa za oslobađanje nuklearne energije. U većini tehnologija za korišćenje ove energije potrebno je da udeo ²³⁵U bude znatno veći od prirodnog. Procesom izotopske prekoncentracije prirodnog uranijuma dobija se obogaćeni uranijum (sadržaj ²³⁵U povećava na oko 3%) koji se koristi kao gorivo u nuklearnim reaktorima i u proizvodnji nuklearnog oružja, a kao nusprodukt ostaje prirodni uranijum sa sadržajem ²³⁵U <0.5% tzv. "osiromašeni" uranijum DU (depleted uranium). Zbog svoje specifične aktivnosti od oko 15 kBq/g klasifikuje se kao niskoradioaktivni materijal (otpad). Usled velike čvrstoće i gustine - oko 70% veće nego Pb, pirofornosti i povoljne cene veoma je pogodan za izradu bojeve municije.

Osiromašeni uranijum predstavlja smešu izotopa ²³⁸U, ²³⁵U i ²³⁴U, ali sa udelom dva lakša izotopa 3-4 puta manjim od udela u prirodnom uranijumu (²³⁵U~0.2%). Aktivnost osiromašenog uranijuma je ~60% aktivnosti prirodnog uranijuma, smanjenjeaktivnosti nastaje najviše zbog smanjenja aktivnosti ²³⁴U, kome treba period reda veličine njegovog poluživota da bi se opet približio sekularnoj ravnoteži. Hemijskim izdvajanjem elementarnog uranijuma on se oslobađa i svih produkata radioaktivnog raspada.

Osiromašeni uranijum koji sadrži 99.8% uranijuma ²³⁸U je možda dobio pogrešan naziv "osiromašeni", pošto ovaj termin podrazumeva da takav proizvod nije štetan ili opasan. Ovaj otpadni produkat nuklearne industrije je našao primenu u proizvodnji oružja zbog svoje ekstremne gustine, zapaljivih i eksplozivnih svojstava, a sa druge strane je dostupan u ogromnim količinama i jeftin je. Danas se projektili sa osiromašenim uranijumom proizvode u vojnoj industriji i koriste za probijanje oklopnih vozila i tenkova. Nakon udara u trenutku eksplozije osiromašeni uranijum na visokim temperaturama prelazi u uranijum-okside UO_2 ili UO_3 koji su čestice nerastvorljive u vodi i vezane za aerosole mogu da se rašire kilometrima u vazduhu i da se talože na tlu gde se dalje mešaju usled kretanja zemljišta ili eolske erozije. Projektili koji ne pogode metu i udare u meko zemljište ostaju kompaktni i usled sporog rastvaranja u vodi mogu se preneti na dublje slojeve ili ući u podzemne vode. Migrativnost uranil-jona u vodi ograničena je adsorpcijom na mineralima glina i ferihidroksidu, obrazovanjem sekundarnih minerala (kompleksni karbonati, fosfati i dr.), kao i redukcionim uslovima. U interakciji voda – zemljište uranijum može da pređe u rastvor i u zavisnosti od daljih geohemijskih procesa dalje rasejava u vodama, zemljištu i stenama ili se na pojedinim mestima u većoj ili manjoj meri akumulira.

Nažalost, pre kratkog vremena bili smo, u ratnim uslovima, izloženi mogućem riziku usled primene projektila od osiromašenog urana. Nema sumnje da su planina Plačkovica u blizini Vranja i tri oblasti u južnoj Srtbiji (Vranje, Preševo i Bujanovac) kontaminirani korišćenjem municije sa osiromašenim uranijumom u toku bombardovanja naše zemlje 1999. godine. Aktivnost standardno korišćenog projektila iz letelice A-10 "Warthog" kalibra 30 mm, mase oko 300g iznosi 3.4 MBq što grubo odgovara aktivnosti prirodnog urana u 100t zemljišta. Na slici 3.2 prikazan je komparativni spektar jednog takvog projektila i zemljišta uzorkovanog na Iriškom vencu (Fruška gora). Sa slike se jasno vidi da je intenzitet γ -zračenja projektila nedostaju postradijumske linije (²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb) što dokazuje nepostojanje prirodne ravnoteže uranijuma sa svojim dugoživećim potomcima.



Slika 3.2 Komparativni spektar projektila od osiromašenog uranijuma (gornji spektar – crvene boje) i zemljišta sa Iriškog Venca (donji spektar sive boje)

Prilikom eksplozije ovakvog projektila na visokoj temperaturi formiraju se oksidi urana koji u formi aerosola kontaminiraju vazduh, a nakon brzog taloženja i zemljište usled čega se na užoj lokaciji javlja radiacioni rizik pri inhalaciji, ingestiji (zemljište-hrana-čovek) ili kontaktu sa ostacima municije (preko kože).

Nakon zalivskog rata u regiji je ostalo oko 300 t radioaktivnog materijala od ovakvih projektila. Ovi projektili su takođe korišćeni u BiH, na Kosovu i u južnoj Srbiji. U Vojvodini nije registrovana povišena radioaktivnost urana.

3.2 Gama-spektrometrijsko određivanje koncentracije aktivnosti uranijuma ²³⁸U

Određivanje sadržaja uranijuma ²³⁸U u uzorcima iz životne sredine neutronskom aktivacijom ili alfa-spektroskopskom metodom je mnogo složenije i duže traje zbog komplikovane pripreme u poređenju sa promptnom gama-spektrometrijom, kao što je opisano u prethodnom poglavlju 2.

Gama zraci nastaju pri deekscitaciji pobuđenih stanja u jezgrima. Ta pobuđena stanja mogu biti popunjena putem nuklearnih reakcija i radioaktivnim raspadom jezgara. Radioaktivnim alfa i beta raspadima dolazi do promene rednog broja jezgra, tj.do promene hemijskog elementa. Početno i krajnje jezgro se obično nazivaju jezgro predak i jezgro potomak. Obično se kao izvor gama zraka uzima ime pretka, iako najčešće gama zraci nastaju iz prelaza između različitih stanja u potomku.



Slika 3.3 Šema raspada uranijuma²³⁸U [47]

Prvi raspad jezgra ²³⁸U α -emisijom vodi na pobuđena stanja torijuma ²³⁴Th (slika 3.3). Punjenje nivoa od 163.0 keV-a je veoma slabo – svega 0.078%, a nivo od 49.5 keV-a, na koji vodi 20.9% alfa-raspada, raspada se uglavnom internom konverzijom koju prati veoma slab gama prelaz sa apsolutnim intenzitetom od samo 0.064%. Zbog toga se sadržaj ²³⁸U u uzorcima iz prirode sa malim sadržajem koncentracije aktivnosti ²³⁸U od oko 50 Bq/kg zbog prisustva ostalih jezgara gama emitera se ne može odrediti gama-spektrometrijom iz gama-linija ²³⁸U.

Kada je radioaktivni niz u ravnoteži, aktivnosti svih radionuklida u nizu su iste, te se koncentracija predaka može odrediti merenjem intenziteta gama zračenja bilo kog potomka. Narušavanje ravnoteže usled geohemijskih procesa se može dogoditi kod dugoživećih članova niza (²³⁰Th i ²²⁶Ra u nizu ²³⁸U, te ²³¹Pa u nizu ²³⁵U). Emanacija gasa radona iz uzoraka narušava ravnotežu nizova kod članova ²²²Rn i ²¹⁹Rn. Držanjem uzoraka u hermetički zatvorenim sudovima u trajanju od oko 10 T_{1/2} (za ²²²Rn, ~40 dana) se ova ravnoteža može ponovo uspostaviti pre merenja.

Nuclide	Half- life	Major gamma radiation energies [ke¥] and intensities in %	
238 U ₉₂	4.51 x 10 ⁹ Y		
234 Th ₉₀ B ⁻	24.1 d	63.3 92.6	4.49 5.16
234 Pam 91	1.17 m	766.6 1001.4	0.21 0.59
[99.87 %] β [−] IT [0.13 %]			
β- Ι	6.75 h	131.2 226.8 569.3 882.0 926.4 946.0	20.0 11.4 13.5 28.0 24.9 12.0
234 U ₉₂ a	2.47 x 10 ⁵ Y	53.2	0.12
230 Th ₉₀	8.0 x 10 ⁴ Y	67.7 143.9	0.38 0.05
226 Ra 88	1602 Y	186.1	3.5
222 Rn ₈₆	3.823 d		
218 Po 84	3.05 m		
[99.98 %] œ β⁻ [0.02 %]			
214 Pb 82	26.8 m	241.9 295.2 351.9	7.46 19.20 37.10
β ⁻ α ^{218 At} 85	~ 2 s		
214 B1 ₈₃ [99.98 %] β [−] α [0.02 %]	19.9 m	609.3 768.4 934.0 1120.3 1238.1 1377.6 1408.0 1729.6 1764.5 2204.1	46.10 4.88 3.16 15.00 5.92 4.02 2.48 3.05 15.90 4.99
214 P 0 84	164 µs	799.7	0.01
210 T1 ₈₁ α β ⁻	1.3 m	296.0 795.0 1160.0 1210.0 1310.0	79.16 98.95 12.37 16.82 20.78
210 Pb 82	22.3 Y	46.5	4.05
210 Bi 83	5.01 d		
[100 %] β α. [0.00013 %	 6]		
210 Po 84	138.4 d	803.0	0.0011
α β ^{-206 T1} 81	4.19 m		
206 Pb 82	stable		

Tabela 3.2 Lista intenzivnih gama linija u uranijum-radijumskom nizu [48]

Uranijum se u principu može odrediti na osnovu gama zračenja radioizotopa dva prirodna radioaktivna niza: uran-aktinijumskog i uran-radijumskog. U raspadu celog niza

²³⁸U se emituje oko 50 intenzivnih karakterističnih gama linija pomoću kojih se u principu mogu dobiti podaci o aktivnostima članova niza. Međutim svega oko 2% od ukupnog gama zračenja niza se emituje iz članova niza pre ²²⁶Ra za koje se može pretpostaviti da su u ravnoteži sa ²³⁸U.

U raspadu direktnih potomaka uranijuma 238 U – jezgara torijuma 234 Th i protoaktinijuma 234 Pa, dominiraju sledeće gama linije navedene u tabeli br.3.3.

Tabela 3.3 Najintenzivnije gama linije direktnih potomaka 238 U. E_{γ} je energija prelaza, a I_{γ} je broj emitovanih gama kvanata po raspadu jezgra (apsolutni intenzitet).

Predak	Jezgro	E _γ [keV]	Ι _γ [%]
		63.3	3.8
	²³⁴ Th	92.3	2.7
		92.8	2.7
		43.5	0.98
²³⁸ U	²³⁴ Pa (1.17m)	766.4	0.3
		1001	0.8
		131.3	17.5
	²³⁴ Pa (6.70h)	569.5	8.0
		925.0	7.6
		241.9	7.46
	²¹⁴ Pb	295.1	19.2
²²⁶ D a		351.9	37.1
Ка		609.3	46.1
	²¹⁴ Bi	1120.3	15.0
		1764.5	15.9
		50.1	8.5
235 _{1 1}	²²⁷ Th	88.5	3.1
U		235.9	11.2
	²¹¹ Bi	350.1	12.8

Obzirom da se prirodni odnos izotopskog sastava uranijuma ne menja, gama linije iz niza uranijuma ²³⁵U se u principu mogu iskoristiti za određivanje uranijuma ²³⁸U, ali je zbog male izotopske obilnosti ²³⁵U u uzorcima iz životne sredine, njihov intenzitet u odnosu na linije ²³⁸U obično nizak (pri ppm nivoima koncentracije uranijuma u uzorku i vremenu snimanja od nekoliko desetina ks - intenzitet im se utapa u statističke fluktuacije fona [4], ili se javljaju u nerazdvojivim dubletima sa gama linijama ostalih prirodnih nizova.



Depleted U spectrum, Coaxial Ge detector

Slika 3.4 Gama spektar osiromašenog uranijuma snimljen koaksijalnim Ge detektorom [49]

Iz uranijum-aktinijumskog niza najpogodnija je složena linija na 186 keV-a, koja je dovoljnog intenziteta, ali jepotrebno korigovati spektralne interference - to je dublet koji grade linija od 186.1 keV iz raspada radijuma ²²⁶Ra i linija od 185.7 keV iz raspada uranijuma ²³⁵U. Intenzitetu ovog instrumentalno nerazdvojivog dubleta, u slučaju ravnoteže nizova, obe komponente doprinose približno jednako. Određivanjem koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra iz posleradonskih analitičkih linija (kada je radon u uzorku doveden do ravnoteže) može se odrediti koji deo linije od 186 keV potiče od ²³⁵U, tj. koliko ²³⁵U, odnosno ²³⁸U, ima u uzorku. Kvantitativno određivanje sadržaja prirodnog uranijuma ²³⁸U se tako može postići gama spektrometrijski sa zadovoljavajućom tačnošću korišćenjem nisko energetskih gama spektrometracije radona u mernoj komori mogu doprineti pogrešnom ustanovljavanju fona merenja, što sa eventualnom greškom u hermetizaciji, može biti jedini uzrok sistematske greške kod ovog određivanja. Pomoću poznate koncentracije ²²⁶Ra u uzorku se iz ukupnog intenziteta linije od 186 keV može odrediti koncentracija ²³⁵U, odnosno, na osnovu poznate izotopske obilnosti ²³⁵U u prirodnom uranijumu, i ²³⁸U.

3.2.1 Provera postojanja sekularne radioaktivne ravnoteže

Obzirom da se aktivnost radioizotopa određuje na osnovu izmerenog broja impulsa N u fotopiku date energije:

$$A = \frac{N}{\varepsilon \, I_{\gamma} \, t_{ex}} \tag{3.1}$$

gde su: ε – efikasnost detektora za datu energiju gama zračenja, I_{γ} - apsolutni intenzitet gama prelaza date energije i t_{ex} – vreme snimanja spektra zračenja uzorka.

Odnos broja impulsa u fotopikovima 235 U i 226 Ra (u dubletu na 186 keV) iz spektra uzorka biće [51]:

$$\frac{N_{U-235}}{N_{Ra-226}} = \frac{A_{U-235} \varepsilon (186 \, keV) \, I_{\gamma_{U-235}} \, t_{ex}}{A_{Ra-226} \varepsilon (186 \, keV) \, I_{\gamma_{Ra-226}} \, t_{ex}} = \frac{A_{U-235} \, I_{\gamma_{U-235}}}{A_{Ra-226} \, I_{\gamma_{Ra-226}} \, r_{ex}}$$
(3.2)

Obzirom da je u slučaju ravnoteže $A_{Ra-226} = A_{U-238}$

$$\frac{N_{U-235}}{N_{Ra-226}} = \frac{A_{U-235}}{A_{U-238}} \frac{I_{\gamma U-235}}{I_{\gamma Ra-226}}$$
(3.3)

Kako je $A = \frac{\lambda \theta Na}{M}m$, gde je

 λ – konstanta radioaktivnog raspada,

 θ – izotopska obilnost posmatranog radioizotopa,

Na – Avogadrov broj

M – atomska masa elementa i

m – masa traženog elementa u uzorku,

sledi

$$\frac{N_{U-235}}{N_{Ra-226}} = \frac{\lambda_{U-235}}{\lambda_{U-238}} \frac{\theta_{U-235} N_a M_U m_U}{\theta_{U-238} N_a M_U m_U} \frac{I_{\gamma U-235}}{I_{\gamma Ra-226}}$$
(3.4)

$$\frac{N_{U-235}}{N_{Ra-226}} = \frac{T_{1/2U-238}}{T_{1/2U-235}} \frac{\theta_{U-235}}{\theta_{U-238}} \frac{I_{\gamma \ U-235}}{I_{\gamma \ Ra-226}} = \frac{4.5110^9}{6.8510^8} \frac{0.796}{99.276} \frac{54}{4} = 0.622$$
(3.5)

Znači, da bi se odredio uran na osnovu merenja aktivnosti ²²⁶Ra i njegovih potomaka najpre treba proveriti u okviru greške merenja broja impulsa u fotopikovima U-235 i Ra-226 iz spektara gama zračenja uzoraka da li je zadovoljen uslov $N_{U-235} = 0.622 N_{Ra-226}$.

3.2.2 Određivanje koncentracije aktivnosti ²³⁸U iz linija ²³⁴Th i ²³⁴Pa

Kao što vidi iz tabele br.3.3, intenzivnije linije ²³⁴Th se nalaze u niskoenergijskom delu gama spektra, gde su najizrazitiji problemi vezani za efikasnost detekcije i gde se, po pravilu, javlja mnoštvo linija od drugih jezgara i karakterističnog X-zračenja elemenata iz okoline detektora.

Linija ²³⁴Pa od 1001keV-a se nalazi u pogodnoj spektralnoj oblasti, međutim, ima nedovoljan intenzitet oko čije vrednosti postoje čak kontraverze i u savremenoj literaturi [52-57]. Ovo se veoma jasno uočava iz najnovijih merenja apsolutne i relativne verovatnoće gama prelaza na 114 različitih energija prelaza (u keV), a posebno za gama liniju od 1001,025 keV. Način raspada ovog radionuklida su beta – raspadi i izomerni prelazi (slika 3.5). U principu, oni proizvode gama linije nepodobne za analizu, zbog niske energije i niske verovatnoće prelaza. Postoji opširan pregled rezultata merenja apsolutne i relativne verovatnoće prelaza za gama liniju od 1001,03 keV od vrednosti koja potiče iz rada
Bjornholma i Nilsena [52] od 0.00590 (10) do najnovijih vrednosti $(0.845 \pm 0.021)\%$ što je za 1.4 puta veće od prvobitno usvojene vrednosti. [56, 57]



Slika 3.5 [57] Grananje uranijum-radijumskog niza usled dvostrukog raspada ^{234m}Pa

Prvi potomak uranijuma ²³⁸U, torijum ²³⁴Th, je beta-emiter koji naseljava pobuđena stanja ²³⁴Pa. Sa ovih nivoa se emituju samo dve gama-linije sa prihvatljivim energijama i intenzitetima: od 63.3 keV, I γ =4.8% i od 92.6 keV, dublet, I γ =5.58%. Ove linije se najčešće koriste za određivanje sadržaja uranijuma ²³⁸U uprkos samoapsorpciji i problemu kalibracije efikasnosti. Obe ove ²³⁴Th linije se jasno mogu detektovati u spektru (slika 3.6). Liniji na 92.6 keV-a doprinosi i torijumova K_a x-linija koja potiče iz beta raspada aktinijuma ²²⁸Ac od 93.3 keV-a (stabilna nekoliko godina : predak radijuma ²²⁸Ra – aktinijum ²²⁸Ac ima period poluraspada od 5.75 godina) i ne može uticati na vremenske varijacije intenziteta u oblasti oko 93 keV. Ova konstantna komponenta čini ovu oblast manje osetljivom na moguće varijacije linije ²³⁴Th od 92.6 keV.



Slika 3.6 Niskoenergetski deo spektra tipičnog uzorka iz životne sredine sa markiranim linijama torijuma²³⁴Th [58]

Za ovakvo određivanje sadržaja uranijuma ²³⁸U bitna je pretpostavka da su uranijum ²³⁸U i njegov prvi potomak perioda poluraspada od 24.1 dana u radioaktivnoj ravnoteži, jer se u suprotnom sadržaj ²³⁸U u uzorcima iz prirode može odrediti tek nakon 250 dana. Ovu pretpostavku o ravnoteži čini još verovatnijom činjenica da je $T_{1/2}(^{234}Th) = 24.1$ dana mnogo kraći od uobičajenih perioda za geohemijske procese.

Međutim rezultati novijih istraživanja morskog sedimenta [59] koji dokazuju narušenu ravnotežu ²³⁸U/²³⁴Th dovele su u sumnju mogućnost promptnog gama-spektrometrijskog određivanja ²³⁸U iz gama-linija direktnog potomka ²³⁴Th. U nekoliko radova izložena je tvrdnja da se u morskim sredinama neravnoteža ²³⁸U/²³⁴Th može iskoristiti za dinamičke studije graničnog sloja sediment-voda [60]. Na osnovu ograničene tačnosti tehnika korišćenih u pomenutim studijama (hemijsko odvajanje torijuma od uranijuma i alfa i beta brojanje) rezultati na osnovu kojih je utvrđena neravnoteža se mogu dovesti u pitanje.

U našoj laboratoriji su direktna merenja sadržaja torijuma ²³⁴Th u svežim i starim uzorcima poslužila za direktno i jednostavno rešenje ovog problema. Izvršeno je poređenje gama-spektrometrijskih merenja ²³⁴Th u uzorcima odmah nakon uzorkovanja i godinu dana nakon prvih merenja na istim uzorcima koji nisu vađeni iz mernih posuda. Geometrijska postavka kao i zaštita detektora je bila identična u oba slučaja. Svaka promena koncentracije aktivnosti ²³⁴Th, koja bi bila posledica prethodne neravnoteže ²³⁸U/²³⁴Th, iskazala bi se u poređenju brzine brojanja u vrhovima totalne apsorpcije na 63.3 keV i na 92.6 keV u prvom i u drugom merenju. Nije nađena nikakva indikacija koja bi dokazala promenu koncentracije aktivnosti ²³⁴Th koja se može pripisati narušenoj ravnoteži ²³⁸U/²³⁴Th. Dobijeni rezultati poređenja promptnog merenja i merenja nakon 1 godine u intenzitetima linija u uzorcima sedimenata su dati u tabeli 3.4, a u uzorcima zemljišta u tabeli 3.5.

innja u uzo	ninja u uzorenna sedimenata						
	R [c/ks]		R [c/ks]				
	E = 63.3 keV		E = 92.6 keV				
Br.uzorka	2001	2003	2001	2003			
1	8.5±1.4	7.5±0.6	10.8±3.0	8.6±1.7			
2	7.8±1.2	7.3±1.1	10.8 ± 4.0	8.6±2.3			
3	9.1±1.0	7.9±0.9	8.3±2.7	10.0±2.7			
4	7.7±0.7	8.1±0.8	8.9±2.7	9.6±1.8			
5	10.2±1.0	9.3±1.3	10.7 ± 2.6	11.7±2.1			
6	9.1±0.9	9.2±0.8	13.7±2.8	10.3±2.1			
7	9.2±1.4	9.0±0.8	12.0±2.7	11.5±2.1			
8	7.1±0.9	7.2±0.7	5.6±2.6	8.8±1.8			
9	10.2 ± 1.4	8.7±1.2	13.8±4.0	9.8±2.5			
A _{sr}	8.5±0.3	8.1±0.3	10.2±1.0	9.6±0.5			

Tabela 3.4 Poređenje promptnog merenja i merenja nakon 1 godine u intenzitetima linija u uzorcima sedimenata

_	R [c/ks]		R [c/ks]	
	E = 63.3 keV		E = 92.6 keV	
Br.uzorka	2001	2003	2001	2003
1	11.8±2.5	10.1±0.8	12.8±4.0	128.6±2.7
2	14.6±1.7	10.7±1.5	14.8 ± 5.0	15.8±2.5
3	9.0±1.5	10.6±0.9	11.8 ± 4.0	12.4±2.9
4	11.8±1.5	11.3±1.3	15.8±4.0	14.3±2.8
5	10.3±1.3	8.8±1.2	11.8 ± 4.0	11.5±3.1
6	8.1±1.0	5.5±1.1	9.2±2.5	7.5±2.4
7	11.5±1.2	9.4±1.1	11.8±3.0	13.1±2.8
8	12.5±2.2	11.6±2.2	13.8±4.0	14.4 ± 4.0
9	10.8±2.9	8.3±2.2	11.8 ± 4.0	8.5±2.2
10	10.5±2.0	10.8±3.8	16.8±4.0	12.9±3.8
A _{sr}	10.5±0.5	9.5±0.4	10.2±1.0	12.9±0.9

Tabela 3.5 Poređenje promptnog merenja i merenja nakon 1 godine u intenzitetima linija u uzorcima zemljišta

Zanemarljivi prinos fona je uračunat u svim slučajevima. Ne može se utvrditi nikakva razlika u vremenskim varijacijama linija od 63.3 keV i 92.6 keV ni u uzorcima sedimenata niti u uzorcima zemljišta.

Najvažniji zaključak je da su rezultati dobijeni kod ponovljenih merenja u suštini isti kao i kod prvih merenja. Nekoliko slučajnih fluktuacija naviše i naniže i u uzorcima sedimenata i u uzorcima zemljišta ne ukazuju na narušenu ravnotežu ²³⁸U/²³⁴Th u uzorcima u vreme uzorkovanja. Poslednji red u sledećoj tabeli 3.6 gde su prikazane otežane srednje vrednosti za zemljište i sediment na godišnjem nivou (za 2001. i 20013.godinu) i za ukupan eksperiment dokazuje ravnotežu ²³⁸U/²³⁴Th u zemljištu i sedimentu sa relativnom greškom od oko 3%.

	R [c/ks]			
	2001	2003		
Zemljište	10.8±0.4	10.1±0.4		
Sediment	8.6±0.3	8.5±0.3		
Ukupan eksperiment	9.3±0.2	9.0±0.2		

Tabela 3.6 Otežane srednje vrednosti za zemljište, sediment i ukupan eksperiment

Na osnovu svega izloženog može se zaključiti da pri promptnom gamaspektrometrijskom određivanju ²³⁸U iz gama-linija ²³⁴Th maksimalna sistematska greška iznosi oko 3% što u kombinaciji sa uobičajenom sistematskom greškom kalibracije efikasnosti detektora od 10% ne utiče značajno na tačnost gama-spektrometrijske metode.

3.3 Metoda određivanja osiromašenog uranijuma

Gama-spektrometrijsko određivanje koncentracije aktivnosti ²³⁵U direktno iz linija koje emituje ovaj radionuklid, a koje ne interferiraju sa drugim linijama iz prirodnih nizova, je sasvim nepouzdano, čak i pri povećanim koncentracijama. Razlikovanje prirodno prisutnog uranijuma u zemljištu od naknadne kontaminacije osiromašenim uranijumom je moguće na osnovu toga da je prirodno prisutni uranijum praćen nizom svojih potomaka, koji su u približnoj radioaktivnoj ravnoteži sa rodonačelnikom, dok se pri hemijskom izdvajanju elementarnog uranijuma za proizvodnju ubojnih sredstava, on odvaja od proizvoda radioaktivnog raspada.

Gama-spektrometrijsko određivanje osiromašenog uranijuma u zemljištu koje je relativno jako kontaminirano, tj. kada koncentracija aktivnosti ²³⁸U za red veličine ili više prevazilazi uobičajenu koncentraciju aktivnosti ²³⁸U u zemljištu (10 Bq/kg – 100 Bq/kg), može relativno lako da se izvede direktnim merenjem niskoenergijskih linija ²³⁴Th, koje su tada dovoljno intenzivne. Tada se praktično u okviru uobičajene merne nesigurnosti od oko 20% može pretpostaviti da čitav ²³⁸U potiče iz osiromašenog uranijuma. U ovom slučaju je moguće relativno pouzdano odrediti i odnos obilnosti ²³⁸U/²³⁵U korišćenjem kombinovane linije na 186 keV, jer ona praktično potiče samo od ²³⁵U. Međutim, ova informacija može da posluži jedino kao dokaz da se radi baš o osiromašenom U, što ionako nije sporno, a stvarno korisna informacija je koncentracija aktivnosti ²³⁸U.

Međutim, u slučaju da je koncentracija aktivnosti ²³⁸U iz osiromašenog uranijma uporediva sa koncentracijom aktivnosti ²³⁸U iz prirodno prisutnog uranijuma, problem postaje mnogo složeniji. Koncentracija prirodno prisutnog ²³⁸U mora se odrediti samo iz koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra, za koga se može pretpostaviti da je u približnoj radioaktivnoj ravnoteži sa prirodno prisutnim ²³⁸U. Sada se ne može koristiti određivanje pomoću kombinovane linije na 186 keV, jer je izotopska obilnost ²³⁵U u osiromašenom U relativno mala i nepouzdana. Preostaje, dakle, samo korišćenje linija iz posleradonskog niza, što podrazumeva da uzorci zemljišta posle pripreme moraju provesti u zatvorenim kontejnerima barem 40 dana pre merenja. Ukupno prisutni ²³⁸U mora se određiti iz niskoenergijskih linija ²³⁴Th (gama linija od 63.3 keV najbolji izbor za analitičko određivanje ²³⁸U), što za sobom povlači sve ranije opisane probleme. U ovom slučaju veliku prednost pokazuju poluprovodnički detektori tipa GMX, kod kojih je povećana efikasnost u niskoenergijskom delu (ispod 100 keV) postignuta tako što je pasivni, neosetljivi sloj pn-spoja postavljen prema osi kristala germanijuma, dok se kod običnih germanijumskih detektora ovaj sloj nalazi na spoljnoj površini kristala Ge.

Koncentracija aktivnosti ²³⁸U koja potiče samo od osiromašenog uranijuma na taj način može se iskazati kao razlika ukupne koncentracije aktivnosti ²³⁸U i koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra. Merna nesigurnost ove razlike biće praktično uslovljena samo mernom nesigurnošću koncentracije aktivnosti ²³⁸U, pošto je merna nesigurnost koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra znatno manja, tako da se pri sabiranju po kvadraturama može zanemariti.

$$A(^{238}U) - A(^{226}Ra) = A(DU)$$
 (3.2).

3.3.1 Faktor ravnoteže ²³⁸U / ²²⁶Ra

Iz uranijum-radijumskog niza gama linije koje potiču od raspada ²²⁶Ra i njegovih potomaka su veoma čiste i intenzivne. Iako se na osnovu ovih linija dobijaju vrlo precizni rezultati za koncentracije aktivnosti uranijuma, u mnogim slučajevima se dobija pogrešna predstava o stvarnoj vrednosti u uzorku zemlje. Radioaktivna ravnoteža između uranijum ²³⁸U i radijuma ²²⁶Ra u uzorcima zemljišta je najčešće narušena usled različitih geohemijskih procesa. Na osnovu rezultata gama-spektrometrijskih merenja više od 200 uzoraka zemljišta sa područja Vojvodine uzetih pre 1999.godine (pre bombardovanja i moguće kontaminacije osiromašenim uranijumom), može se zaključiti da je odnos koncentracija aktivnosti ²³⁸U i ²²⁶Ra kod svih uzoraka približno konstantan i iznosi [61]:

$$K = \frac{A(^{238}U)\left[\frac{Bq}{kg}\right]}{A(^{226}Ra)\left[\frac{Bq}{kg}\right]} = 1.3 \pm 0.3$$
(3.3)

To znači da su sadržaji uranijuma ²³⁸U i radijuma ²²⁶Ra u prirodnom zemljištu povezani relacijom:

$$A(^{238}U) = K \cdot A(^{226}Ra)$$
(3.4)

Faktor ravnoteže K se određuje na sledeći način: korišćenjem najintenzivnijih linija torijuma ²³⁴Th i protoaktinijuma ²³⁴Pa (tabela 3.3) određuje se koncentracija aktivnosti ²³⁸U, a koncentracija aktivnosti radijuma ²²⁶Ra se računa na osnovu post- radonskih linija. Uzorci moraju odstajati hermetički zatvoreni 40 dana pre merenja.

Na vrednost faktora K može uticati greška krive efikasnosti za voluminozne izvore. Na osnovu hemijskog ponašanja uranijuma u zemljištu, teško je razumeti neke publikovane vrednosti K<<1 [62]. Pošto je period poluraspada radijuma ²²⁶Ra 1620 godina njegova aktivnost može uticati na aktivnost izrazito dugoživećeg pretka uranijuma ²³⁸U samo u slučaju neobično brzih geohemijskih procesa. U svakom slučaju, ukoliko je vrednost faktora K nepoznata, ona se uvek može odrediti na osnovu merenja nekontaminiranog zemljišta istog tipa kao i ispitivano zemljište.

Da bi se procenila aktivnost prirodnog uranijuma 238 U na osnovu osiromašenog uranijuma ($^{238}U_D$), neophodno je odrediti narušenu ravnotežu uranijuma 238 U i radijuma 226 Ra :

$$A(^{238}U_D) = A(^{238}U) - K \cdot A(^{226}Ra)$$
(3.5)

$$\Delta A(^{238}U) = \{ [\Delta A(^{238}U)]^2 + [\Delta A_K]^2 \}^{1/2}$$
(3.6)

$$\Delta A_{K} = K \cdot \left\{ \left[\frac{\Delta A \left({}^{226} Ra \right)}{A \left({}^{226} Ra \right)} \right]^{2} + \left[\frac{\Delta K}{K} \right]^{2} \right\}^{1/2} \cdot A \left({}^{226} Ra \right)$$
(3.7)

gde je $A(^{238}U)\pm\Delta A(^{238}U)$ koncentracija aktivnosti uranijuma ^{238}U izračunata na osnovu linija torijuma 234 Th i protoaktinijuma 234 Pa ; $A(^{226}Ra)\pm\Delta A(^{226}Ra)$ je koncentracija aktivnosti radijuma 226 Ra izračunata iz post-radonskih linija sledećih izotopa 210 Pb, 214 Pb i 214 Bi.

Primena ovog metoda za izračunavanje koncentracije aktivnosti osiromašenog uranijuma $^{238}U_d$ može se ilustrovati na primeru tri uzorka zemljišta sa lokaliteta gađanih u toku bombardovanja 1999. godine koje je naša laboratorija merila: prvi uzorak sa visokim sadržajem osiromašenog uranijuma (šifra uzorka LVJ4), drugi uzorak sa srednjim sadržajem osiromašenog uranijuma (šifra uzorka LVJ3) i treći uzorak bez prisustva osiromašenog uranijuma (šifra uzorka LVJ3). Rezultati merenja su prikazani u tabeli 3.7.

Tabela 3.7 Koncentracije aktivnosti uranijuma ²³⁸U, radijuma ²²⁶Ra, osiromašenog uranijum ²³⁸U_d, kalijuma ⁴⁰K i torijuma ²³²Th u uzorcima zemljišta sa terena gađanih u toku bombardovanja 1999.

Šifra	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³⁸ Ud	⁴⁰ K	²³² Th
uzorka	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]
LVJ4	5000±130	19.8±2.1	4980±130	530±40	30±3
LVJ3	115±15	13.2±2.3	98±16	187±22	13.5±1.1
LVJ7	33±8	22.4±2.2	<10	1210±70	45±3

U drugoj koloni data je koncentracija aktivnosti ²³⁸U koja je izračunata iz potomaka ²³⁸U: ²³⁴Th i ²³⁴Pa, u trećoj koloni data je koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra izračunata iz potomaka ²²⁶Ra posle ²²²Rn: ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi i ²¹⁰Pb i u četvrtoj koloni su izračunate vrednosti koncentracije aktivnosti ²³⁸U koje se mogu pripisati kontaminaciji osiromašenim uranijumom. U petoj i šestoj koloni su koncentracije aktivnosti prirodno prisutnih kalijuma ⁴⁰K i radioaktivnog niza kome je rodonačelnik ²³²Th. Prikazane merne nesigurnosti su na nivou poverenja od 95%.

Prvi prikazani uzorak ima vrlo veliku koncentraciju aktivnosti ²³⁸U, koja se sva može pripisati kontaminaciji osiromašenim uranijumom; koncentracija aktivnosti prirodno prisutnog uranijuma je zanemarljiva. Drugi uzorak ima koncentraciju aktivnosti ²³⁸U koja je sigurno povišena usled kontaminacije osiromašenim uranijumom; merna nesigurnost malo zavisi od merne nesigurnosti ²²⁶Ra, uključujući i nesigurnost empirijskog faktora neravnoteže. Treći uzorak nije kontaminiran, a iskazana merna nesigurnost govori o redu veličine granice detekcije ²³⁸U od kontaminacije osiromašenim uranijumom, a koja se postiže opisanom metodom i korišćenjem poluprovodničkih detektora tipa GMX u gvozdenoj zaštiti.



Slika 3.7 Uporedo prikazani spektar zemljišta sa osiromašenim uranijumom LVJ4 (crveni spektar) i spektar uzorka zemljišta bez osiromašenog uranijuma LVJ7 (plavi spektar)

3.3.2 Granice detekcije osiromašenog uranijuma

Koncentracija aktivnosti ²³⁸U koja potiče samo od osiromašenog uranijuma izražava se kao razlika ukupne koncentracije aktivnosti ²³⁸U i koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra. Merna nesigurnost ove razlike biće praktično uslovljena samo mernom nesigurnošću koncentracije aktivnosti ²³⁸U, pošto je merna nesigurnost koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra znatno manja, tako da se pri sabiranju po kvadraturama može zanemariti. Merna nesigurnost malo zavisi od merne nesigurnosti ²²⁶Ra, uključujući i nesigurnost empirijskog faktora neravnoteže.

Procena reda veličine za granicu detekcije osiromašenog uranijuma u uzorcima zemljišta se može izvršiti na osnovu izmerenih vrednosti:

$$A(^{238}U) = 191 \text{ Bq/kg}$$
 (3.8)

$$\Delta A (^{238}U) = 24 \text{ Bq/kg}$$
(3.9)

$$A(^{226}Ra) = 35 Bq/kg$$
 (3.10)

$$\Delta A (^{226} Ra) = 4 Bq/kg \qquad (3.11)$$

Vreme merenja datog uzorka je iznosilo 44,472 ks, dok se greška određuje na nivou poverenja od 90%.

A
$$(^{238}U_D) = (191 - 1.3x35) (Bq/kg) = 146 Bq/kg$$
 (3.12)

$$\Delta A_{\rm K} = 11.7 \; {\rm Bq/kg} \tag{3.13}$$

$$\Delta A (^{238}U_D) = 27 \text{ Bq/kg}$$
(3.14)

A
$$(^{238}U_D) = (146\pm27)$$
 Bq/kg (3.15)

Za srednje kontaminirano zemljište eksperimentalna merna nesigurnost je iznosila 27 Bq/kg ili 18%. Ako prihvatimo najjednostavniju definiciju granice detekcije: $a_L(^{238}U_D)=\Delta(^{238}U_D)$, tada na osnovu izmerenih vrednosti možemo grubo proceniti red veličine granice detekcije osiromašenog uranijuma u uzorcima zemljišta na $a_L(^{238}U_D)\approx 10$ Bq/kg.

3.4 Eksperimentalni rezultati

220

Opisani metod određivanja koncentracija aktivnosti osiromašenog uranijuma testiran je na brojnim uzorcima koji su tokom i nakon NATO-agresije ispitani u Laboratoriji za Nuklearnu fiziku Instituta za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu. Merenja su vršena na spektrometru ORTEC "GMX", nominalne efikasnosti 30%, koji je postavljen u niskofonsku zaštitu izrađenu od gvožđa livenog pre II Svetskog rata, tj. pre početka atmosferskih nuklearnih proba. Zidovi komore debeli su 25 cm i smanjenje fona unutar komore u odnosu na fon u prostoriji je više od tri reda veličine. Prednost gvozdene zaštite u odnosu na zaštitu od olova posebno dolazi do izražaja kod merenja malih koncentracija uranijuma, pošto olovo neizbežno sadrži određenu malu koncentraciju potomaka uranijumovog radioaktivnog niza. Vreme merenja je iznosilo oko 40 ks po uzorku, što je značajno napomenuti, jer merna nesigurnost rezultata ovih merenja opada sa kvadratnim korenom iz vremena merenja.

Uzorak zemljišta	Koncentracije aktivnosti [Bq/kg]					
Lokacija (datum uzorkovanja)	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	²³⁸ U _d	¹³⁷ Cs
TV Novi Sad I (06. '99)	<26	23.4±1.2	31±10	382±13	<26	< 0.27
TV Novi Sad II (06. '99)	25±9	27.9±1.2	37.0±1.5	479±21	<9	0.6±0.4
Rafinerija (rezervoar) (04. '99.)	11±6	10.6±0.4	11.0±0.5	219±11	<9	0.8±0.2
Rafinerija (kapija 4) (04. '99.)	20±6	18.7±0.5	20.3±1.1	281±17	<6	1.0±0.4
Rafinerija (uljara 1) (05. '99.)	20±8	16.1±.0.7	17.5±1.1	312±21	<6	0.5±0.3
Rafinerija (radionica) (05. '99.)	20±11	12.5±0.6	12.3±1.1	273±14	<11	3.2±0.6
Ribnjak (07. '99.)	24±1	23.2±2.0	39.3±2.4	380±60	<2.2	< 0.4
TV toranj, Venac (06. '99.)	12±5	19.5±0.4	24.1±0.7	325±13	<5	0.6±0.1
EPS,Venac (09. '99.)	27±20	30.3±0.9	41.8±2.2	434±23	<20	< 0.4
Iriški venac 1a (09. '99.)	80±30	46±2	62±4	560±50	<30	27±2
Iriški venac 1b (09. '99.)	56±23	54±3	49±3	450±40	<23	86±5
Iriški venac 2 (09. '99.)	80±30	46±2	62±4	580±40	<30	27±2
Iriški venac 7 (09. '99.)	64±20	41±2	60±3	730±40	<20	29±2
Iriški venac 8 (09. '99.)	80±30	46±2	62±4	580±40	<30	27±2
Iriški venac 10 (09. '99.)	35±27	138±7	44±4	440±70	<28	188±13
Iriški venac 12 (09. '99.)	54±17	39±2	55±4	680±40	<17	144±8
Sediment, ušće kanala DTD(09.'99.)	33±10	31.3±1.4	30±2	459±27	<10	25.1±1.6
Sediment, Dunav-Subić (09.'99.)	55±10	49±2	32±2	408±29	<10	46±2

Tabela 3.8. Koncentracije aktivnosti karakterističnih radionuklida u uzorcima zemljišta u Novom Sadu u toku bombardovanja uzorkovano nakon pada bombi na datu lokaciju

Tabela 3.9 Koncentracije aktivnosti karakterističnih radionuklida u uzorcima zemljišta sa juga Srbije u toku bombardovanja - uzorkovano nakon pada bombi na datu lokaciju

REGION	ŠIFRA UZORKA	²³⁸ U [Ba/kg]	²²⁶ Ra [Bq/kg] post Rn	²³⁸ U _D [Ba/kg]	⁴⁰ K [kBa/kg]	²³² Th [Ba/kg]
	LVJ18	29±7	15.7 ± 2.9	<18	0.450 ± 0.022	34.4±1.9
	LVJ19	25 ± 6	15 ± 4	<15	0.480 ± 0.023	34.5 ± 2.3
	LVJ4	5000 ± 1300	19.8 ± 2.1	5000 ± 1300	0.53 ± 0.04	30 ± 3
1	LVJ20	70 ± 12	29 ± 5	32 ± 16	0.587 ± 0.028	46.5 ± 2.5
	LVJ21	42 ± 8	30 ± 4	<16	0.554±0.027	42.2 ± 2.4
	LVJ22	191 ± 24	35 ± 4	146 ± 27	$0.73 {\pm} 0.04$	52.0 ± 2.9
	LVJ23	32 ± 11	24 ± 4	<15	0.522 ± 0.026	41.8 ± 2.5

DECION	ŠIFRA	²³⁸ U	²²⁶ Ra [Bq/kg]	²³⁸ U _D	⁴⁰ K	²³² Th
KEGION	UZORKA	[Bq/kg]	post Rn	[Bq/kg]	[kBq/kg]	[Bq/kg]
2	LVJ3	115 ± 15	13.2 ± 2.3	98 ± 16	0.187 ± 0.022	13.5 ± 1.1
	LVJ24	17 ± 10	8.3 ± 2.2	<17	0.128 ± 0.011	11.4 ± 0.9
	LVJ25	14 ± 5	9.6 ± 1.4	<8	0.116 ± 0.010	13.1 ± 1.0
2	LVJ26	75 ± 10	10.8 ± 1.9	61 ± 11	0.137 ± 0.010	12.4 ± 0.9
	LVJ27	19±5	11.3 ± 1.8	<10	0.145 ± 0.010	14.0 ± 1.0
	LVJ28	16±6	7.5 ± 1.8	<13	0.141 ± 0.010	11.4 ± 0.7
	LVJ5	2000 ± 600	116 ± 11	1850 ± 600	1.28 ± 0.09	72 ± 7
	LVJ14	113 ± 18	76±6	<44	0.695 ± 0.028	52 ± 3
3	LVJ15	107 ± 14	67 ± 7	<57	0.81 ± 0.04	46.9 ± 2.6
	LVJ16	108 ± 14	72 ± 7	<53	0.76 ± 0.04	47.7 ± 2.6
	LVJ17	56±9	30 ± 4	17 ± 14	0.510 ± 0.027	30.9 ± 2.0
	LVJ2	42 ± 9	22 ± 3	13 ± 12	1.14 ± 0.08	52 ± 3
	LVJ1	74 ± 10	29.7 ± 2.8	35 ± 14	1.15 ± 0.07	62 ± 4
	LVJ6	38 ± 8	19±3	<27	1.18 ± 0.08	48.6 ± 2.8
	LVJ8	65 ± 16	26 ± 4	31±19	1.02 ± 0.07	67 ± 4
4	LVJ7	33±8	22.4 ± 2.2	<15	1.21 ± 0.07	45 ± 3
4	LVJ9	41 ± 8	26.4 ± 2.6	<19	1.19 ± 0.08	51 ± 4
	LVJ10	44 ± 7	24 ± 3	13 ± 11	1.29 ± 0.08	31.7 ± 2.4
	LVJ11	40 ± 11	20 ± 3	14 ± 13	0.93 ± 0.06	41 ± 3
	LVJ12	51±9	25 ± 4	<36	0.85 ± 0.04	61±3
	LVJ13	47±9	27.2 ± 2.1	<24	0.98 ± 0.05	64 ± 4

Poređenjem rezultata merenja iz tabela3.8 i 3.9 može se zaključiti da u uzorcima sa područja Novog Sada nije detektovano prisustvo osiromašenog uranijuma, za razliku od uzoraka sa juga Srbije.

Opisani metod detekcije osiromašenog uranijuma se može primeniti na dalja istraživanja radioaktivnosti u regionu, a naročito za praćenje migracije osiromašenog uranijuma u kontaminiranim područjima.

3.4.1 Praćenje radioaktivnosti zemljišta sa područja opštine Novi Sad

Zemljište je kompleksan materijal koji se sastoji od mineralne (neorganske) kao i organske komponente koja uglavnom nastaje raspadom biljnog materijala. Neorganska, ili mineralna komponenta zemljišta se sastoji od čestica nastalih erozivnim dejstvom raznih prirodnih faktora na stene. Kako stene koje ulaze u sastav zemljine kore poseduju određenu koncentraciju prirodnih radionuklida, za očekivati je da se oni mogu naći i u zemljištu nastalom raspadanjem stena.



Slika 3.8 Neorganska i organska komponenta zemljišta

Iako u Srbiji nema nuklearnih elektrana, u neposrednom okruženju (Mađarska, Bugarska i Rumunija) postoje nuklearne elektrane. Pri njihovom regularnom režimu rada dolazi do ispuštanja malih količina određenih radionuklida u životnu sredinu, dok su u slučaju eventualnih akcidentalnih situacija moguća ispuštanja vrlo visokih aktivnosti fisionih produkata (kao što su cezijum ¹³⁷Cs i ¹³⁴Cs i jod ¹³¹I) u atmosferu i vodotokove koji se mogu brzo transportovati i do ekosistema na teritoriji AP Vojvodine, odnosno dovesti do kontaminacije zemljišta i sedimenta. Kao posledica akcidenta u Černobilu 1986.godine još uvek se u zemljištu i sedimentu Vojvodine nalazi fisioni produkt cezijum ¹³⁷Cs, čije je hemijsko ponašanje veoma slično kalijumu, te ga biljke mogu relativno lako usvajati, čime on dospeva u lance ishrane kopnenih i vodenih ekosistema. Različiti geohemijski procesi dovode do njegove redistribucije i koncentrisanja na pojedinim mikrolokacijama, što implicira veći radijacioni efekat i rizik po zdravlje odgovarajuće populacije organizama, pa prema tome i ljudi.

Jedan od mogućih izvora radioaktivne kontaminacije zemljišta i sedimenta jeste koncentrisanje prirodnih radionuklida (uranijum ²³⁸U, radijum ²²⁶Ra, torijum ²³²Th i olovo ²¹⁰Pb) kao posledica nenuklearnih tehnologija: sagorevanje uglja, proizvodnja veštačkih đubriva i đubrenje zemljišta fosfatnim đubrivima, proizvodnja deterdženata, eksploatacija nafte i zemnog gasa, koje dovode do opterećenja životne sredine NORM i TENORM materijalima. Putem vodotokova i podzemnih voda ovi materijali mogu da dospeju i u zaštićena područja, kao što su specijalni rezervati prirode i parkovi prirode, narušavajući osetljivu ravnotežu flore i faune na ovim lokacijama. Niskofonska gama-spektrometrijska metoda je pogodna za određivanje niskih aktivnosti prirodnih i veštačkih radionuklida gama emitera u uzorcima iz životne sredine zbog relativno jednostavne i brze pripreme uzoraka i zadovoljavajuće tačnosti. Na taj način se može analizirati raspodela i mogući procesi redistribucije prirodno prisutnih radionuklida, ali i prisustvo proizvedenih, poput ¹³⁷Cs, kao posledica nuklearnih akcidenata u prošlosti.

Da bi se procenila ingestiona doza koju čovek primi od radionuklida iz okruženja koristi se lanac ishrane. Svi modeli pri tome koriste transfer faktore kao kvantitativnu meru prelaska radionuklida iz jedne karike lanca u drugu. Transfer radionuklida kroz lance ishrane se intenzivno proučava u poslednjih 50 godina usled testiranja nuklearnog oružja i ispuštanja radionuklida u životnu sredinu zbog povećane upotrebe nuklearne energije. Međunarodna

Agencija za atomsku energiju IAEA je na osnovu velikog broja istraživanja napravila široku bazu podataka za vrednosti transfer faktora radionuklida iz zemljišta u biljke [63].

Transfer faktor (F_V) za unos bilo kog radionuklida iz zemljišta u biljne kulture koje se na tom zemljištu uzgajaju se definiše kao odnos koncentracije aktivnosti datog radionuklida u biljci (Bq/kg) i koncentracije aktivnosti u zemljištu (Bq/kg), pri čemu se podrazumevaju vrednosti dobijene za sušene uzorke zemljišta i biljaka:

$$F_{V} = \frac{aktivnost radionuklida u suvoj biljci \left[\frac{Bq}{kg}\right]}{aktivnost radionuklida u suvom zemljištu \left[\frac{Bq}{kg}\right]}$$
(3.16)

Transfer faktor radionuklida iz zemljišta u biljke zavisi od više faktora: fizičkohemijskih karakteristika radionuklida, oblika nataložene padavine ili otpada, vremena koje je proteklo od zagađenja, karakteristika zemljišta, tipa biljne kulture i načina obrade zemljišta.



Slika 3.9. Način usvajanja materija iz zemljišta preko vode

Transfer faktori dati u tabelama priručnika IAEA su vrednosti koje se odnose na rastvorljiva jedinjenja koja imaju veću pokretljivost u sistemima zemljište – biljka. Akumulacija radionuklida u biljnim kulturama koje se najčešće uzgajaju zavisi i od tipova zemljišta. Razlike u transfer faktorima za različite vrste zemljišta može da varira i do dva reda veličine. Karakteristike zemljišta koje utiču na ove vrednosti su: minerološki i granulometrijski satav zemljišta, organski sadržaj u zemljištu, pH i plodnost zemljišta. Razlika u biološkim karakteristima pojedih biljnih vrsta takođe može biti uzrok u velikim razlikama u transfer faktorima. Razlog tome su varijacije u metabolitičkim i biohemijskim mehanizmima usvajanja radionuklida od strane biljka, hemijska priroda radionuklida, mehanizmi detoksikacije, hidrološki uslovi u zemljištu, biljkama dostupne koncentracije u rizosferi u zemljištu. Plodnost zemljišta, trajanje vegetativnog perioda i karakter distribucije korenog sistema u zemljištu takođe utiču na transfer faktor. Razlika u akumulaciji preko korenog sistema među različitim biljnim vrstama može biti i za faktor 100. Radionuklidi se najčešće akumuliraju u lišću i stablu, dok se mnogo manje koncentrišu u plodu.

radionuklid	Biljna kultura	Deo biljke	Transfer faktor F_v
¹³⁷ Cs	žitarice	zrna	2.9 x 10 ⁻²
		stablo i izdanci	1.5 x 10 ⁻¹
	kukuruz	zrna	3.3 x 10 ⁻²
		stablo i izdanci	7.3 x 10 ⁻²
	lisnato povrće	lišće	6.0 x 10 ⁻²
	nelisnato povrće	plodovi	2.1 x 10 ⁻²
	mahunarke	zrna i mahune	$4.0 \ge 10^{-2}$
	korenasto povrće	koren	4.2×10^{-2}
		lišće	3.5 x 10 ⁻²
	luk	lukovica	5.6 x 10 ⁻²
⁴⁰ K	žitarice	zrna	7.4 x 10 ⁻¹
		stablo i izdanci	1.1
	lisnato povrće	lišće	1.3
	ispaša	stablo i izdanci	7.3 x 10 ⁻¹
²²⁶ Ra	žitarice	zrna	1.7 x 10 ⁻²
		stablo i izdanci	3.6 x 10 ⁻²
	kukuruz	zrna	2.4 x 10 ⁻³
		stablo i izdanci	1.8 x 10 ⁻²
	lisnato povrće	lišće	9.1 x 10 ⁻²
	nelisnato povrće	plodovi	1.7 x 10 ⁻²
	mahunarke	zrna i mahune	1.4 x 10 ⁻²
	korenasto povrće	koren	7 x 10 ⁻²
		lišće	7.1 x 10 ⁻²
	luk	lukovica	1.1 x 10 ⁻²
		izdanci	1.6 x 10 ⁻¹
	trava	stablo i izdanci	1.3 x 10 ⁻¹
	ispaša	stablo i izdanci	7.1 x 10 ⁻²
	krmno bilje	stablo i izdanci	1.7 x 10 ⁻¹
	ostalo	suncokret	4.2 x 10 ⁻¹
		lišće čaja	3.3 x 10 ⁻²

Tabela 3.10. Podaci za transfer faktore za ¹³⁷Cs, ²²⁶Ra, ⁴⁰K, ²³²Th i ²³⁸U iz zemljišta u biljku [63]

radionuklid	Biljna kultura	Deo biljke	Transfer faktor Fv
²³² Th	žitarice	zrna	2.1 x 10-3
		stablo i izdanci	6.1 x 10-3
	kukuruz	zma	6.4 x 10-5
		stablo i izdanci	1.8 x 10-3
	lisnato povrće	lišće	1.2 x 10-3
	nelisnato povrće	plodovi	7.8 x 10-4
	mahunarke	zrna i mahune	5.3 x 10-4
	korenasto povrće	koren	8.0 x 10-4
		lišće	8.7 x 10-3
	luk	lukovica	2 x 10-4
	ispaša	stablo i izdanci	9.9 x 10-2
²³⁸ U	žitarice	zrna	6.2 x 10-3
		stablo i izdanci	2.7 x 10-2
	kukuruz	zrna	1.5 x 10-2
		stablo i izdanci	7.8 x 10-3
	lisnato povrće	lišće	2.0 x 10-2
	nelisnato povrće	plodovi	1.5 x 10-2
	mahunarke	zrna i mahune	2.2 x 10-3
	korenasto povrće	koren	8.4 x 10-3
		lišće	2.8 x 10-2
	luk	lukovica	5.0 x 10-3
	ispaša	stablo i izdanci	4.6 x 10-2

U zavisnosti od bioloških karakteristika, biljke mogu da apsorbuju radionuklide iz zemljišta i akumuliraju ih u stabljici, listu i plodu. Zbog ove karakteristike, potrebno je odrediti koncentraciju aktivnosti radionuklida u uzorcima poljoprivrednog zemljišta.

Opisana niskofonska gama-spektrometrijska metoda za određivanje sadržaja uranijuma u uzorcima iz životne sredine je primenjena u monitoringu radioaktivnosti poljoprivrednog i nepoljoprivrednog zemljišta na području opštine Novi Sad u periodu od 2006 - 2012 godine i u projektu praćenja radioaktivnosti poljoprivrednog zemljišta na 50 lokacija na području Vojvodine u toku 2001. i nakon 10 godina u toku 2011.godine. Ovi projekti su finansirani od strane Gradske uprave za zaštitu životne sredine grada Novog Sada i Pokrajinskog sekretarijata za zaštitu životne sredine i održivi razvoj AP Vojvodine.

U tabeli 3.10 su prikazane srednje vrednosti kao i standardne devijacije za radionuklide čije je prisustvo detektovano u svim uzorcima poljoprivrednog zemljišta. U poslednjoj koloni tabele prikazan je opseg u kome se nalaze izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti za pojedine radioizotope.

Uzorci zemljišta su uzeti po metodi IAEA Technical Report Series No.295 – Measurement of Radionuclides in Food and the Environment - Section 5. Collection and Preparation of Samples-page 27 (5.2.3 Soil). Uzorci zemljišta su sušeni na 105°C do konstantne mase. Nakon toga je izvršeno uklanjanje svih mehaničkih nečistoća, uglavnom kamenčića i delova biljnog materijala. Osušeni uzorci zemljišta su mehanički usitnjeni do forme finog praha i homogenizovani. Konačno je materijal pripremljen na ovaj način prenet u posude za merenje oblika cilindra visine 62 mm, i prečnika 67 mm. Tipična masa uzoraka iznosila je između 200 i 300 g. Koncentracija aktivnosti radionuklida određena je metodom niskofonske gama-spektrometrije.



Slika 3.10 Uzorkovanje na terenu

Gama-spektrometrijska merenja su izvršena prema standardnoj metodi ASTM C 1402 – 04 Standard Guide for High Resolution Gamma Ray Spectrometry of Soil Samples na četiri visokorezoluciona HPGe detektora u nisko-fonskoj laboratoriji za nuklearnu fiziku, Departmana za fiziku u Novom Sadu.

Tipično vreme merenja uzoraka iznosilo je 60000 s. Na osnovu intenziteta gama linija zabeleženih u izmerenim spektrima, izračunate su koncentracije aktivnosti za sve radioizotope koji se u uzorcima nalaze. Za radioizotope kojima nije primećena ni jedna

karakteristična gama linija u spektrima, procenjena je gornja granica koncentracije aktivnosti u uzorcima zemljišta. Greške rezultata merenja su iskazane sa nivoom poverenja od 95%, što znači da je verovatnoća da se pri ponovljenom merenju istog uzorka dobije rezultat izvan granica iskazane greške manja od 5%.

Tabela 3.11 Srednje vrednosti, standardne devijacije, minimalne i maksimalne koncentracije aktivnosti radionuklida merene u uzorcima poljoprivrednog zemljišta na teritoriji opštine Novi Sad u periodu 2006.-2012.godine

Broj merenja	radionuklid	A _{sr} [Bq/kg]	$\sigma(A_{sr})$ [Bq/kg]	Opseg [Bq/kg]
270	⁴⁰ K	537	106	262 - 840
270	²³² Th	38	10	6 - 64
270	²³⁸ U	39	19	7 - 107
270	²²⁶ Ra	32	8	4.4 - 51
270	¹³⁷ Cs	6	3	0.7 - 27.5

Dobijene vrednosti za radioaktivnost zemljišta se dobro uklapaju u ln-normalnu distribucije karakteristične za prirodne radionuklide koje su prikazane na slikama 3.11 do Slika 3.15). Ove slike predstavljaju raspodele izmerenih koncentracija aktivnosti radionuklida u uzorcima poljoprivrednog zemljišta za monitoring radioaktivnosti zemljišta na području Novog Sada koji se sprovodi svake godine počev od 2006.godine. Prirodni radionuklidi – uranijum ²³⁸U, kalijum ⁴⁰K, torijum ²³²Th i radijum ²²⁶Ra pokazuju normalnu raspodelu u uzorcima zemljišta pomerenu ka nižim koncentracijama aktivnosti, dok radionuklidi veštačkog porekla ili proizvedeni ne pokazuju pravilnost u raspodeli što je takođe očekivano i karakteristično za ovaj tip radionuklida. Cezijum ¹³⁷Cs se vezuje u površinskom sloju za finiju granulaciju zemljišta i spira se i redistribuira u ekosistemu još jedan duži niz godina, pošto je period poluraspada ovog radionuklida 30 godina, a na našem području dominantno potiče od havarije nuklearne elektrane Černobil 1986.god. Koncentracije aktivnosti²³⁸U su pomerene ka nižim vrednostima. U pojedinim uzorcima zemljišta izmerene su blago povišene koncetracije ²³⁸U, verovatno usled korišćenja fosfatnih đubriva.



Slika 3.11 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti uranijuma ²³⁸U u uzorcima poljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.12 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti radijuma ²²⁶Ra u uzorcima poljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.13 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti torijuma ²³²Th u uzorcima poljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.14 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti kalijuma ⁴⁰K u uzorcima poljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.15 Raspodela koncentracija aktivnosti cezijuma ¹³⁷Cs u uzorcima poljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine

Ove vrednosti mogu se uporediti sa vrednostima izmerenim u drugim državama u regionu i šire (tabela 3.12). Može se uočiti da se radioaktivnost zemljišta kreće u približno istim opsezima dok na odstupanja utiče tip i vrsta zemljišta. Koncentracija aktivnosti torijuma ²³²Th je nešto viša za indijsko zemljište, dok je koncentracija aktivnosti uranijuma ²³⁸U na Siciliji (Stromboli) [64] povišena u odnosu na vojvođansko zemljište (moguće objašnjenje je postojanje stena vulkanskog porekla na Stromboliju). Odnos uranijum/torijum ²³⁸U/²³²Th je približno jednak jednici za ostala zemljišta (Turska, Irska i Japan) [65,66,67,68,69] što je slučaj i sa vojvođanskim zemljištem i ukazuje na odsustvo kontaminacije uranijumom. Međutim ukoliko se intenzivira korišćenje fosfatnih đubriva sa povišenim sadržajem uranijuma može doći do narušavanja ove ravnoteže.

companioon		i i i i i i i i i i i i i i i i i i i	oumpies mom				
Radionuclide	Vojvodina ^a	India (Selvasekarapandian et al., 2000)	Egypt (Sroor et al., 2001)	Istanbul (Karahan and Bayulken, 2000)	Stromboli (Brai et al., 2002)	Ireland (McAuley and Moran, 1983)	Japan (Chen et al., 1993)
-	\bar{A} [Bq/kg]						
²³² Th ²³⁸ U ⁴⁰ K	$\begin{array}{c} 53 \pm 8 \\ 51 \pm 9 \\ 554 \pm 92 \end{array}$	104 ± 77 34 ± 11 217 ± 145	$6 \pm 3 \\ 13 \pm 9 \\ 433 \pm 130$	35 ± 7 27 ± 11 322 ± 87	68 ± 1 100 ± 11 754 ± 9	26 37 350	54 32.4 794

Tabela 3.12 Poređenje sadržaja radionuklida u vojvođanskom zemljištu i zemljištu drugih država

Comparison of the natural radioactivity of soil samples from different countries

^a Present work.

Na osnovu međunarodnih podataka [63] za transfer faktore radionuklida iz zemljišta u biljke datih u tabeli 3.13 Moguće je proceniti na osnovu srednjih vrednosti koncentracija aktivnosti radionuklida u zemljištu za date lokacije kolika bi bila maksimalna koncentracija aktivnosti radionuklida u biljnim kulturama koje bi se uzgajale na datom zemljištu. Ova procena je bitna sa aspekta proizvodnje zdravstveno bezbedne hrane sa niskim sadržajem radioaktivnosti. Treba napomenuti da na taj način procenjene vrednosti u stvari predstavljaju sadržaj radionuklida u sušenom biljnom materijalu i da su koncentracije aktivnosti radionuklida u svežim biljkama u proseku 4 do 5 puta manje vrednosti zbog sadržaja vode.

Biljna kultura	Deo biljke	¹³⁷ Cs u sušenim biljkama [Bq/kg]	²²⁶ Ra u sušenim biljkama [Bq/kg]
žitarice	zrna	0.16	0.66
kukuruz	zrna	0.18	0.09
	stablo i izdanci	0.40	0.7
lisnato povrće	lišće	0.33	3.5
nelisnato povrće	plodovi	0.12	0.66
mahunarke	zrna i mahune	0.22	0.54
korenasto povrće	koren	0.23	2.7
	lišće	0.19	2.8
luk	lukovica	0.31	0.43

Tabela 3.13 Procena transfer faktora za ¹³⁷Cs i ²²⁶Ra iz zemljišta u biljke na osnovu srednjih koncentracija aktivnosti ovih radionuklida u poljoprivrednom zemljištu

Kada se na izmerenim vrednostima napravi korelacija koncentracija aktivnosti uranijuma²³⁸U i radijuma²²⁶Ra može se uočiti linearna zavisnost (slika 3.16) sa faktorom ravnoteže

$$K = \frac{A(^{238}U)\left\lfloor\frac{Bq}{kg}\right\rfloor}{A(^{226}Ra)\left\lfloor\frac{Bq}{kg}\right\rfloor} = 1.2 \pm 0.5$$
(3.17)

tako da je pokazano da se prethodno uočeno narušavanje ravnoteže između uranijuma ²³⁸U i radijuma ²²⁶Ra održava u novijim ispitivanjima.



Slika 3.16 Korelacija između izmerenih koncentracija aktivnosti uranijuma ²³⁸U i radijuma ²²⁶Ra u uzorcima poljoprivrednog zemljišta

Za razliku od korelacije koncentracije aktivnosti cezijuma ¹³⁷Cs i koncentracije aktivnosti radijuma ²²⁶Ra (slika 3.17) gde se ne može uočiti nikakva pravilnost kod korelacije koncentracije aktivnosti torijum ²³²Th i radijuma ²²⁶Ra (slika 3.18) uočava se linearna zavisnost što ukazuje na to da nije bilo procesa ispiranja i relokacije radionuklida čime bi ova ravnoteža bila narušena. Dobra korelacija između prirodnih radioaktivnih elemenata se može objasniti kako geološkom prošlošću zemljišta, tako i činjenicom da ljudskim aktivnostima nije došlo do povećanja koncentracije jednog od njih na bilo kojoj od lokacija na kojima je zemljište uzorkovano.



Slika 3.17 Korelacija koncentracije aktivnosti ¹³⁷Cs od koncentracije aktivnosti radijuma ²²⁶Ra



Slika 3.18 Korelacija koncentracije aktivnosti ²³²Th od koncentracije aktivnosti radijuma ²²⁶Ra

Ispitivanje radioaktivnosti zemljišta i sedimenta u nepoljoprivrednom zemljištu, ka što su parkovi i zaštićena prirodna područja, kao što je park prirode Begečka jama, ima višestruke koristi jer može da ukaže na površinsku kontaminaciju radionuklidima usled depozicije iz vazduha ili vodenih ekosistema. Pored toga dobijaju se rezultati dragoceni za radiološke karte zemljišta, odnosno atlase prirodne radioaktivnosti, pošto se radi o neobrađivanom zemljištu koje se ne meša i čiji sastav se ne narušava uticajem čoveka. Takođe, praćenjem redistribucije radionuklida u ovakvom zemljištu moguće je proceniti eroziju tla što je od velike važnosti za dugogodišnje upravljanje zemljištom.

U tabeli 3.14 data je statistika izmerenih koncentracija aktivnosti radionuklida u uzorcima nepoljoprivrednog zemljišta uzorkovanog na području opštine Novi Sad u periodu od 2006-2012.godine.

Tabela 3.14 Srednje vrednosti, standardne devijacije, minimalne i maksimalne koncentracije aktivnosti radionuklida merene u uzorcima nepoljoprivrednog zemljišta na teritoriji opštine Novi Sad u periodu 2006.-2012.godine

Broj merenja	radionuklid	A _{sr} [Bq/kg]	$\sigma(A_{sr})$ [Bq/kg]	Opseg [Bq/kg]
191	⁴⁰ K	413	121	112 - 800
191	²³² Th	27	12	6.3 - 58
191	²³⁸ U	31	17	6.4 - 82
191	²²⁶ Ra	24	10	3.5 - 46
191	¹³⁷ Cs	10	12	0.6 - 93

Na osnovu dobijenih rezultata, generalno se može zaključiti da uzorci zemljišta sa svih lokacija ne ukazuju na povećanje radioaktivnosti koje bi ugrozilo osetljivu ravnotežu flore i faune u ovom zaštićenom području. Koncentracija aktivnosti uranijuma ²³⁸U u površinskom sloju zemljišta kreće se u granicama od 6.4 do 82 Bq/kg što je u dobrom slaganju sa vrednostima za vojvođansko zemljište za koje postoji najbolja sistematika merenja. Ni u jednom uzorku nije primećena povišena aktivnost uranijuma ²³⁸U, ²³⁵U, tako ni osiromašenog uranijuma. Niske koncentracije uranijuma ²³⁸U ukazuju i na to da je ovo područje izolovano od poljoprivrednih parcela i da nema izraženog spiranja i nanošenja zemljišta na ovo područje. Koncentracije prirodnih radionuklida u uzorcima zemljišta su u proseku duplo niže nego u uzorcima poljoprivrednog zemljišta, što potvrđuje prethodnu tvrdnju.

Koncentracije aktivnosti prirodnog radionuklida kalijuma ⁴⁰K se u svim uzorcima kreću u uobičajenim granicama. Može se uočiti da je prisustvo ovog radionuklida u organskom materijalu normalno jer biljke usvajaju ovaj elemenat u značajnoj meri iz podloge.

Cezijum ¹³⁷Cs je detektovan u svim uzorcima zemljišta i sedimenta i velike razlike u koncentracijama od mikrolokacije do mikrolokacije ukazuju na njegovu redistribuciju usled izgleda terena (spiranje niz strimine na obali Begeja, Dunava ili jame) ili plavljenje i stvaranje sedimenta i mulja uz obalu. Raspodele koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida i ¹³⁷Cs date su na slikama: 3.19 - 3.24. Može se uočiti narušavanje ln-normalne raspodele i pomeranje ka nižim vrednostima.



Slika 3.19 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti uranijuma ²³⁸U u uzorcima nepoljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.20 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti radijuma ²²⁶Ra u uzorcima nepoljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.21 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti torijuma ²³²Th u uzorcima nepoljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.22 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti kalijuma ⁴⁰K u uzorcima nepoljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine



Slika 3.23 Raspodela koncentracija aktivnosti cezijuma ¹³⁷Cs u uzorcima nepoljoprivrednog zemljišta Novi Sad 2006.-2012.godine

Ako se prikaže korelacija između koncentracije aktivnosti ²³⁸U i ²²⁶Ra može se uočiti potvrda vrednosti za koeficijent ravnoteže $K = 1.3\pm0.6$ što zavisi od velike raznovrsnosti nepoljoprivrednog zemljišta.



Slika 3.24 Korelacija između koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra i ²³⁸U

Ono što je uočeno u drugom projektu naše Laboratorije tokom ispitivanja radioaktivnosti zemljišta i sedimenta specijalnog rezervata prirode Zasavica je da je transfer faktor radionuklida prisutnih u zemljištu u močvarne biljke (lokvanj, rogoz, trska) znatno veći nego kod poljoprivrednih kultura. Koncentracije radionuklida u sušenoj trsci i rogozu i u

okolnom zemljištu i sedimentu bile su na istom nivou što nije uočeno kod ostalih biljaka (trave, poljoprivrednih kultura i sl.). Ove močvarne biljke predstavljaju bioremedijatore verovatno zbog svog anaerobnog načina usvajanja hranljivih materija i izraženog sitastog sistema u dugačkoj i širokoj stabljici. Ovaj zaključak zahteva opsežnije multidisciplinarno istraživanje i pošto za ovo područje Begečke jame postoji sistematika merenja radioaktivnosti u zemljištu i sedimentu, logično je da se nastavi sa ispitivanjem radioaktivnosti biljnog močvarnog materijala kako bi se potvrdila ova tvrdnja.



Slika 3.25 Slike sa uzorkovanja trske i zemljišta sa terena

Tabela 3.15 Poređenja koncentracija aktivnosti radionuklida u zemljištu i koncentracije aktivnosti u trsci i rogozu čija je podloga dato zemljište

	Konce	Koncentracija aktivnosti radionuklida [Bq/kg]									
	¹³⁷ Cs	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	40 K						
Zemljište	7.9 ± 1.0	49 ± 16	29.4 ± 2.1	31.4 ± 2.5	500 ± 40						
Biljni materijal (rogoz)	< 5	< 40	38 ± 7	42 ± 7	800 ± 60						
Zemljište	2.0 ± 0.5	37 ± 7	24.3 ± 1.7	26.8 ± 2.3	424 ± 23						
Biljni materijal (trska)	< 3	< 23	< 7	32 ± 8	600 ± 40						
Zemljište	6.6 ± 0.8	36 ± 15	28.7 ± 2.1	21.8 ± 2.0	370 ± 30						
Biljni materijal (trska)	< 5	< 60	< 8	8 ± 3	1420 ± 70						

3.4.2 Praćenje radioaktivnosti zemljišta Vojvodine

Poljoprivredno zemljište je uzorkovano sa 50 lokacija sa područja AP Vojvodine u toku 2001.godine [70] i nakon deset godina uzorkovanje i gama-spektrometrijsko ispitivanje zemljišta je ponovljeno na istim lokacijama i 2010. godine u cilju praćenja radioaktivnosti zemljišta regiona Vojvodine.



Slika 3.26 Mapa Vovjodine sa 50 lokacija na kojima je uzorkovano zemljište

Na svakoj lokaciji uzeti su uzorci zemljišta iz površinskog sloja do 5 cm dubine sa 10 mikrolokacija na površini 10 m x 10 m i napravljen je jedan kompozitni uzorak. Lokacije su birane proporcionalno broju stanovnika i površini pojedinih regiona (Bačka -20 uzoraka, Banat – 20 uzoraka i Srem – 10 uzoraka). Takođe su zastupljeni svi tipovi zemljišta u skladu sa pedološkom kartom Vojvodine, na kojima se uzgajaju poljoprivredne kulture. Najviše uzoraka je zemljište tipa černozem koji je ujedno najzastupljeniji u Vojvodini.

Red. br.	Lokalitet	Geomorf.celina	Tip zemljišta	Način korišćenja	GPS	
1	Horgoš	Sub. horgoška peščara	Arenosol	vinograd	N 46°08'17,5'' E 19°59'31 9'' 87 m	
2	Palić	Sub. horgoška peščara	Solončak	pašnjak	N 46°06'10,3'' E 19°51'55,5'' 99 m	
3	Žednik	Bačka lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°57'15,0'' E 19°37'58,3'' 109 m	
4	Aleksa Šantić	Bačka lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°55'38,3'' E 19°20'10,9'' 119 m	
5	Tornjoš	Bačka lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°52'15,3'' E 19°48'54,6''107 m	
6	Gakovo	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica	N 45°53'28,5'' E 19°03'52,8'' 91 m	
7	Kula	Bačka lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°38'33,3'' E 19°32'10,3'' 106 m	
8	Bečej	Aluvijalna ravan	Humoglej	oranica	N 45°34'51,6'' E 20°04'43,4'' 77 m	

Tabela 3.16. Geomorfološke celine, tip zemljišta, način korišćenja i GPS koordinate lokacija

Red. br.	Lokalitet	Geomorf.celina	Tip Način zemljišta korišćenja		GPS
9	Srbobran	Bačka lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°33'11,0'' E 19°43'59,8'' 87 m
10	Srpski Miletić	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica, neuzor. ž.o. soje	N 45°33'31,2'' E 19°13'04,5'' 91 m
11	Bogojevo	Bačka lesna terasa	Humoglej	oranica, neuzor. ž.o. kukuruza	N 45°32'03,7'' E 19°06'27,8'' 88 m
12	Nadalj	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica, neuzor. ž.o. soje	N 45°31'14,6'' E 19°54'03,3'' xxx m
13	Ruski Krstur	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica, neuzor. ž.o. kukuruza	N 45°34'27,2'' E 19°26'38,6'' 86 m
14	Parage	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica, neuzor. ž.o. kukuruza	N 45°24'26,0'' E 19°25'11,7'' 89 m
15	Rimski Šančevi	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica, neuzor. ž.o. soje	N 45°19'50,6'' E 19°50'48,6'' 87 m
16	Žabalj	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica, neuzor. ž.o. kukuruza	N 45°25'04,9'' E 20°04'21,2'' 85 m
17	Maglić	Bačka lesna terasa	Černozem	oranica	N xx°xx'xx,x'' E xx°xx'xx,x'' xxx m
18	Kać	Aluvijalna ravan	Fluvisol	pašnjak	N 45°18'25,3'' E 19°52'59,0'' 79 m
19	Bačko Novo Selo	Aluvijalna ravan	Fluvisol	oranica, neuzor. ž.o. pšenice	N 45°17'51,3'' E 19°08'18,7''88 m
20	Ban. Aranđelovo	Aluvijalna ravan	Humoglej	oranica	N 46°02'16,3'' E 20°16'26,7'' 79 m
21	Sanad	Aluvijalna ravan	Fluvisol	pašnjak	N 45°59'12,6'' E 20°06'29,6'' 82 m
22	Crna Bara-Čoka	Banatska lesna terasa	Černozem	oranica	N 45°56'33,0'' E 20°10'20,4'' 86 m
23	Kikinda	Banatska lesna terasa	Černozem	oranica, neuzor. ž.o. kukuruza	N 45°51'15,5'' E 20°27'35,3'' 79 m
24	Rusko Selo	Banatska lesna terasa	Humoglej	oranica	N 45°41'41,0'' E 20°37'09,3'' 82 m
25	Torda	Banatska lesna terasa	Humoglej	oranica	N 45°35'57,7'' E 20°26'58,4'' 81 m
26	Kumane	Banatska lesna terasa	Solonjec	pašnjak	N 45°32'01,6'' E 20°12'49,2'' 74 m
27	Begejci	Banatska lesna terasa	Černozem	oranica	N 45°31'29,9'' E 20°36'04,6'' 80 m
28	Zrenjanin	Banatska lesna terasa	Černozem	oranica	N 45°25'02,6'' E 20°23'34,8'' 81 m
29	Boka	Banatska lesna terasa	Solonjec	pašnjak	N 45°21'00,4'' E 20°50'45,5'' 73 m
30	Orlovat	Tamiška lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°15'27,6'' E 20°33'22.9'' 88 m
31	Vršački Ritovi	Aluvijalna ravan	Humoglej	oranica	N 45°11'31,7'' E 21°11'50,5'' 85 m

Red. br.	Lokalitet	Geomorf.celina	Tip zemljišta	Način korišćenja	GPS
32	Kozjak	Deliblatska les. zaravan	Černozem	oranica	N 45°11'29,9''
33	Ilandža	Banatska lesna terasa	Humoglej	oranica	N 45°11'10,3'' E 20°55'18 0'' 87 m
34	Idvor	Banatska lesna terasa	Černozem	oranica	N 45°10'37,2'' E 20°30'10 1'' 83 m
35	Padina	Deliblatska les.zaravan	Černozem	oranica	N 45°07'04,3'' E 20°42'52.9'' 116 m
36	Vršac	Vršačke planine	Kambisol	vinograd	N 45°06'25,5'' E 21°19'12,2'' 137 m
37	Crepaja	Banatska lesna terasa	Černozem	oranica	N 44°59'53,1'' E 20°38'24,4'' 84 m
38	Deliblato	eliblato Deliblatska peščara		oranica	N 44°51'32,4'' E 21°03'33,8'' 134 m
39	Bavanište	Banatska lesna terasa	Černozem	oranica	N 44°49'29,3'' E 20°51'11.6'' 90 m
40	Petrovaradin	Fruška gora	Kambisol	oranica	N 45°14'19,9'' E 19°52'11.9'' 136 m
41	Šid	Fruškog. lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°06'51,6'' E 19°15'02,8'' 111 m
42	Rivica	Fruškog. lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°05'52,5'' E 19°49'50,9'' 209 m
43	Ruma	Fruškog. lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°03'11,6'' E 19°50'41.1'' 147 m
44	Inđija	Fruškog. lesna zaravan	Černozem	oranica	N 45°06'11,5'' E 20°01'52,0'' 152 m
45	Morović	Aluvijalna ravan	Pseudoglej	šuma	N 45°01'46,5'' E 19°13'12,1'' 86 m
46	Višnjićevo	Aluvijalna ravan	Pseudoglej	šuma	N 44°57'52,3'' E 19°16'48,7'' 84 m
47	S.Mitrovica	Sremska lesna terasa	Černozem	oranica	N 44°58'20,6'' E 19°39'02,5'' 86 m
48	Popinci	Sremska lesna terasa	Černozem	oranica	N 44°55'19,6'' E 19°59'03,6'' 89 m
49	Donji Tovarnik	Sremska lesna terasa	Humoglej	oranica	N 44°49'26,0'' E 19°56'41,4'' 81 m
50	Kupinovo	Aluvijalna ravan	Fluvisol	šuma	N 44°41'35,9'' E 20°02'20,2'' 73 m

Poređenje izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida i cezijuma u poljoprivrednom zemljištu Vojvodine za 2001. i 2010.godinu dato je u tabeli 3.17. U većini uzoraka zemljišta detektovano je prisustvo ¹³⁷Cs u tragovima. Koncentracija aktivnosti ovog antropogenog radionuklida su niže u poređenju sa vrednostima izmerenim prošlih godina, što je i očekivano jer ovaj radionuklid dominantno potiče od havarije nuklearne elektrane u Černobilu i ima period polu-raspada od 30,17 godina. Procesi ispiranja

i relokacije cezijuma mogu da dovedu do veoma neravnomerne distribucije ovog radionuklida u jednoj oblasti. Najviša aktivnost ¹³⁷Cs od 42,6 Bq/kg zabeležena je na lokaciji Bavanište na samom ulasku u Deliblatsku peščaru. Ovo se može objasniti eolskom erozijom i pojačanim nanosom ovog radionuklida.

Gama-spektrometrijska metoda određivanja sadržaja radionuklida u zemljištu je uspešno primenjena na praćenje i varijaciju koncentracije aktivnosti uranijuma ²³⁸U, radijuma ²²⁶Ra, torijuma ²³²Th i kalijuma ⁴⁰K. Koncentracije aktivnosti radijuma i torijuma su se održale na približno istom nivou dok se kod koncentracije aktivnosti uranijuma ²³⁸U mogu uočiti veće varijacije, verovatno zbog različitog đubrenja zemljišta i upotrebe fosfatnih đubriva sa dodatnim sadržajem uranijuma ²³⁸U. Zemljište je uzorkovano u novembru i na nekim njivama je bilo izvršeno đubrenje pred setvu pšenice. Opisana metoda za detekciju uranijuma je pokazala da ni u jednom uzorku nije detektovan osiromašeni uranijuma ²²⁶Ra (slika 3.27). U svim uzorcima zemljišta je detektovan kalijum ⁴⁰K koji se vezuje za glinastu strukturu našeg zemljišta, a različit sadržaj ovog radionuklida u zemljištima zavisi od uzgajane kulture i organskih ostataka koji ostaju u zemljištu nakon žetve.

	-	Koncentracije aktivnosti radionuklida, A [Bq/kg]									
	Lokacije	23	⁸ U	226	Ra	232,	Th	40	K	137	Cs
	=	2001	2010	2001	2010	2001	2010	2001	2010	2001	2010
1.	Bečej	60±30	40±4	26.8±1.4	26.7±1.7	51.7±2.5	47.4±2.5	720±30	794±26	8.8±0.7	9.2±0.6
2.	Nadalj	54±17	36±4	44.1±1.9	33.8±2.5	52±3	41.5±2.6	553±29	556±19	13.3±1.2	7.7±0.5
3.	Srbobran	48±16	66±4	39.2±2.5	46.8±2.2	49.4±2.5	56.0±2.2	515±26	697±23	9.0±1.3	6.2±0.5
4.	Palić	24±9	9.4±1.7	19.9±1.8	9.7±1.3	23.5±2.6	11.7±0.5	310±20	238±10	8.3±0.9	6.3±0.4
5.	Čoka	42±16	22.0±2.1	35.3±1.4	29.4±1.6	53.3±2.6	41±3	619±27	684±18	12.0±1.0	9.1±0.4
6.	Tornjoš	58±17	78±11	43±3	41.9±2.3	54±3	45±5	492±27	560±50	10.0±1.1	3.8±0.5
7.	B.Novo Selo	35±11	25.3±2.0	30.2±1.9	29.4±1.3	36.7±2.3	30.9±2.9	464±21	554±15	6.0±0.7	4.4±0.2
8.	Srpski Miletić	64±29	< 20	40.5±2.7	40.5±2.1	57±3	39.2±2.7	580±30	452±24	6.4±0.8	3.6±0.3
9.	Orlovat	53±15	36±3	37.0±2.5	37.3±2.3	54.7±2.8	43.7±1.6	630±30	594±16	9.6±0.8	6.7±0.3
10.	Kikinda	43±18	<21	29.0±2.8	30.0±1.7	55.9±2.9	35±5	710±40	524±28	11.7±1.3	5.1±0.4
11.	Petrovaradin	60±18	66±4	42.2±2.0	47.9±2.5	62±3	64.4±2.5	590±30	705±23	13.8±1.6	6.7±0.5
12.	Kać	56±27	35±3	44.1±2.6	28.7±2.6	48±3	32±4	600±30	530±20	8.1±1.1	8.0±0.6

Tabela 3.17 Po	pređenje izmereni	h vrednosti	koncentracija	aktivnosti p	prirodnih i	radionuklid	a i
cezijuma u pol	ljoprivrednom zer	nljištu Vojv	odine za 2001	. i 2010.god	linu		

				Konc	entracije	aktivnosti	radionuk	lida, A [B	q/kg]		
	Lokacije	23	⁸ U	226	Ra	232	Th	40	K	137	Cs
		2001	2010	2001	2010	2001	2010	2001	2010	2001	2010
13.	Idvor	41±19	25±3	21.3±2.4	34.0±2.8	34±4	47.2±2.3	350±26	703±22	7.2±1.1	10.2±0.6
14.	Boka	53±18	44 <u>+</u> 4	44.2±2.1	34.1±1.7	64±4	43.4±2.7	550±30	633±21	10.3±1.1	10.3±0.6
15.	Sanad	49±14	54±4	34.9±2.0	35±4	51±3	61.1±1.4	640±40	1000±30	9.3±1.2	4.4±0.5
16.	Kula, Lipar	56±23	28.3±2.6	43.2±2.3	38.5±2.4	54±3	45.8±2.9	493±27	552±15	7.8±1.3	6.9±0.3
17.	Parage	66±19	38.5±2.9	45.5±2.9	39.3±1.3	57±4	45.1±1.2	560±30	588±21	9.4±1.4	5.6±0.5
18.	Rivica	63±16	80±10	45.2±2.8	43.4±2.8	63±3	48±5	560±30	520±40	8.5±0.7	5.5±0.5
19.	Visnjićevo	55±17	< 22	51.0±2.1	34.3±1.9	63±3	35±11	610±30	507±27	8.1±1.1	12.2±0.7
20.	Maglić	39±15	35±4	40.6±2.5	36.4±2.0	52.3±2.8	38±5	513±28	465±25	5.7±0.9	3.04±0.29
21.	Šid	69±16	< 21	44.4±2.2	40.2±2.1	59±3	44±5	567±28	521±27	7.5±0.7	3.3±0.3
22.	Vršac	50±20	74±3	31.9±2.2	49.1±2.6	59±4	70.5±2.3	580±30	701±24	12.6±1.4	5.0±0.6
23.	Crepaja	44±24	67±10	36.4±2.3	43.1±2.2	50.7±2.5	42±5	480±30	500±40	17.5±1.4	9.9±0.7
24.	Gakovo	55±16	47±3	41.6±2.5	38.6±1.1	52±3	44.2±1.1	475±25	497±18	7.0±0.9	2.3±0.4
25.	Zrenjanin	49±23	25.3±2.5	40.4±1.8	37.0±1.6	50.1±2.4	48±3	526±25	677±8	8.5±1.1	5.6±0.3
26.	Padina	55±22	< 21	41.0±2.4	41±3	55±3	41±5	534±29	492±26	12.3±1.1	6.7±0.5
27.	Deliblato	51±14	16.9±1.6	41.5±2.7	20.7±1.2	54.3±2.9	24.3±2.7	501±23	399±11	28.2±1.9	20.4±0.5
28.	R. Šancevi	52±16	73±10	40.5±2.6	39.9±2.5	54±3	43±4	610±30	560±50	6.9±1.4	5.1±0.5
29.	Bogojevo	42±17	17.2±1.6	37±3	23.5±1.8	48.2±2.8	24.1±2.7	543±28	428±12	9.2±1.0	4.49±0.23
30.	Rusko Selo	53±14	30±3	34.9±1.5	25.1±2.3	54±3	35.4±1.8	730±40	621±20	19.7±1.2	11.9±0.7
31.	Morovic	56±18	72±10	50.9±1.8	36.2±2.8	59±3	48±6	571±26	520±40	7.8±0.7	12.1±0.8
32.	Ruma, Irig	50±16	68±4	50.4±2.0	47.0±2.1	60±3	64.8±2.0	557±29	758±24	7.7±0.9	7.9±0.6
33.	A. Santic	60±17	< 21	46.6±2.4	39±4	54.4±2.7	37±3	470±30	380±21	6.7±0.7	4.4±0.4
34.	Bavaniste	59±17	37±3	43±4	37.3±2.7	55.2±2.9	45.5±2.1	550±30	623±20	55±3	42.6±1.2

				Konc	entracije	aktivnosti	i radionuk	lida, A [B	q/kg]		
	Lokacije	23	⁸ U	226	Ra	232	Th	40	K	137	Cs
	•	2001	2010	2001	2010	2001	2010	2001	2010	2001	2010
35.	Pecinci, Popinci	56±16	38±4	39.4±2.9	34.1±1.6	56±3	47±3	534±28	569±19	11.5±1.6	9.9±0.6
36.	R. Krstur	56±15	26.0±2.3	48.6±2.0	35.6±1.4	53.7±2.6	41.5±2.8	523±24	581±16	7.7±0.7	5.60±0.27
37.	Zednik	49±22	< 20	40.1±2.6	36.6±1.9	50.5±2.6	35.9±2.3	488±28	392±21	11.1±1.5	5.5±0.4
38.	Horgos	31±9	24±5	19.7±1.0	12.4±0.8	22.0±1.5	14.6±1.2	238±13	249±21	1.1±0.3	5.6±0.4
39.	Ilandza	57±20	< 22	42.3±2.4	42.3±2.3	57±3	44±3	550±40	521±28	18.4±1.5	12.4±0.7
40.	Kozjak	52±16	43±7	40.1±2.7	41±3	50.1±2.7	38.7±2.9	500±30	480±40	15.5±1.3	11.0±0.6
41.	Zabalj	45±17	52±5	41.8±2.4	36.7±2.5	59±3	47.7±2.0	640±30	658±22	10.5±1.0	9.0±0.6
42.	Vrsacki Ritovi	30±24	53±4	26.2±1.7	33.1±2.9	54.8±2.8	56.7±2.6	551±23	745±25	48.7±2.4	25.8±1.0
43.	Begejci	56±18	61±4	50.9±1.8	45.1±2.6	59±3	57.9±1.4	571±26	786±26	7.8±0.7	6.7±0.6
44.	B. Arandjelovo	50±16	70±10	50.4±2.0	30.0±1.8	60±3	41±5	557±29	590±50	7.7±0.9	6.5±0.6
45.	Torda	55±16	< 22	40.3±2.0	37±3	59±3	46±3	660±30	590±30	15.5±1.3	10.1±0.6
46.	Kumane	49±22	59±9	37.9±2.0	31.1±1.7	55.0±2.7	45±4	720±30	640±50	6.8±0.6	7.8±0.6
47.	Donji Tovarnik	50±23	76±10	40±3	41.7±2.1	62±3	50±10	600±30	610±50	9.4±1.1	7.4±0.6
48.	Obedska Bara	72±21	31.1±2.8	43.3±2.5	24.9±2.7	62±3	34.8±1.0	630±30	479±19	11.9±1.1	18.4±0.9
49.	Indjija	57±23	< 20	44±3	38.6±2.0	59±3	35±13	580±30	488±26	6.7±0.9	4.5±0.4
50.	Sr.Mitrovica	49±15	73±9	39.9±2.4	35.3±2.1	55±3	42.3±2.9	536±24	530±40	5.9±0.6	5.0±0.5

Generalno se može zaključiti da uzorci zemljišta sa svih lokacija ne ukazuju na povećanje radioaktivnosti koje bi ugrozilo proizvodnju hrane. Izmerene vrednosti koncentracije aktivnosti radionuklida u ovom zemljištu ne odstupaju od uobičajenih vrednosti za poljoprivredno zemljište u Vojvodini. Izmerene koncentracije aktivnosti ¹³⁷Cs, uzimajući u obzir transfer faktore ovog izotopa u biljke, ne bi trebalo da ugroze zdravstvenu bezbednost proizvedene hrane.



Slika 3.27 Korelacije prirodnih radionuklida ²³⁸U i ²²⁶Ra u zemljištu za 2010.godinu

Ovim merenjima je potvrđeno i da se sadržaj radionuklida u zemljištu uzorkovanom iz površinskog sloja ne razlikuje od sadržaja radionuklida u uzorcima zemljišta koji su uzeti sa dubine od 30 cm na kojoj se nalazi koreni sistem većine poljoprivrednih kultura. U tabeli br. 3.18 su data poređenja izmerenih vrednosti koncnetracija aktivnosti prirodnih radionuklida i cezijuma u poljoprivrednom zemljištu uzorkovanom 2010.godina na 50 lokacija na različitim dubinama – na 30 cm i iz površinskog sloja do 5 cm dubine. Uočavaju se razlike u izmerenim vrednostima samo u okviru greške merenja, osim za uranijum ²³⁸U gde su nešto veća odstupanja, verovatno zbog đubrenja i uzgajanja različitih poljoprivrednih kultura. Ovo je očekivano pošto se poljoprivredno zemljište obrađivanjem meša do dubine oranja (visina pluga ≥ 35 cm) i zbog toga se ne može uočiti dubinska distribucija radionuklida kakva se očekuje kod nepoljoprivrednog neobrađivanog zemljišta. Ova distribucija je za radionuklide veštačkog porekla, kao što je cezijum ¹³⁷Cs je eksponencijalne prirode i služi za procenu brzine erozije zemljišta [71,72].

			Koncentracije aktivnosti radionuklida, A [Bq/kg]										
		238	³ U	226	Ra	232	Th	40	K	137	Cs		
	Laborita				DUBIN	A UZORKOV	VANJA ZEM	LЛŠTA					
	Гокастје	30 cm	5 cm	30 cm	5 cm	30 cm	5 cm	30 cm	5 cm	30 cm	5 cm		
1.	Bečej	40±4	40±4	28.5±2.0	26.7±1.7	44.8±1.9	47.4±2.5	774±29	794±26	7.9±0.8	9.2±0.6		
2.	Nadalj	40±5	36±4	40.4±1.7	33.8±2.5	48.9±2.9	41.5±2.6	590±30	556±19	7.8±1.0	7.7±0.5		
3.	Srbobran	45±10	66±4	40.5±2.3	46.8±2.2	41.1±2.8	56.0±2.2	485±26	697±23	4.3±0.4	6.2±0.5		
4.	Palić	15±4	9.4±1.7	12.4±0.9	9.7±1.3	12±3	11.7±0.5	195±12	238±10	5.9±0.4	6.3±0.4		
5.	Čoka	21.4±1.7	22.0±2.1	32.7±2.6	29.4±1.6	40.9±2.9	41±3	666±19	684±18	8.5±0.4	9.1±0.4		
6.	Tornjoš	38±8	78±11	40.0±2.6	41.9±2.3	42±3	45±5	500±30	560±50	4.2±0.5	3.8±0.5		
7.	B.Novo Selo	47±9	25.3±2.0	33.8±1.9	29.4±1.3	30.7±2.3	30.9±2.9	510±40	554±15	3.5±0.5	4.4±0.2		
8.	Srpski Miletić	55±9	< 20	40±3	40.5±2.1	41±3	39.2±2.7	490±40	452±24	3.6±0.5	3.6±0.3		
9.	Orlovat	73±9	36±3	41.7±2.0	37.3±2.3	40±4	43.7±1.6	530±40	594±16	5.6±0.5	6.7±0.3		
10.	Kikinda	35±4	<21	30.5±2.5	30.0±1.7	39.9±1.3	35±5	645±28	524±28	5.8±0.7	5.1±0.4		
11.	Petrovaradin	43±3	66±4	42.3±0.9	47.9±2.5	54.1±2.2	64.4±2.5	598±20	705±23	6.4±0.5	6.7±0.5		
12.	Kać	43±10	35±3	32.0±2.1	28.7±2.6	27.6±2.3	32±4	436±27	530±20	5.1±0.6	8.0±0.6		
13.	Idvor	29.2±2.2	25±3	36.3±1.7	34.0±2.8	48±4	47.2±2.3	698±21	703±22	9.5±0.5	10.2±0.6		
14.	Boka	41±4	44±4	35±4	34.1±1.7	43.2±2.1	43.4±2.7	645±18	633±21	14.0±0.5	10.3±0.6		
15.	Sanad	32 <u>+</u> 4	54±4	29.2±2.0	35±4	47±6	61.1±1.4	783±29	1000±30	5.1±0.7	4.4±0.5		
16.	Kula, Lipar	13 <u>+</u> 4	28.3±2.6	44±3	38.5±2.4	39±3	45.8±2.9	519±28	552±15	5.3±0.4	6.9±0.3		
17.	Parage	46±10	38.5±2.9	41.5±2.4	39.3±1.3	41±5	45.1±1.2	510±27	588±21	5.1±0.4	5.6±0.5		
18.	Rivica	55±11	80±10	44±4	43.4±2.8	45.1±2.9	48±5	499±26	520±40	5.1±0.4	5.5±0.5		
19.	Visnjićevo	33±3	< 22	30.0±2.7	34.3±1.9	37.7±1.8	35±11	610±19	507±27	13.6±0.6	12.2±0.7		
20.	Maglić	71±13	35±4	44.7±2.6	36.4±2.0	47±4	38±5	570±50	465±25	3.5±0.7	3.04±0.29		

Tabela 3.18 Poređenje izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida i cezijuma u poljoprivrednom zemljištu Vojvodine 2010.godine u površinskom sloju i na dubini od oko 30 cm

		Koncentracije aktivnosti radionuklida, A [Bq/kg]										
		238	³ U	226	Ra	232	Th	40	K	137	Cs	
	Lokacije				DUBIN	A UZORKOV	VANJA ZEMI	LJIŠTA				
		30 cm	5 cm	30 cm	5 cm	30 cm	5 cm	30 cm	5 cm	30 cm	5 cm	
21.	Šid	26.9±2.4	< 21	40.7±0.9	40.2±2.1	51±4	44±5	644±17	521±27	4.62±0.24	3.3±0.3	
22.	Vršac	71±10	74±3	44.0±2.1	49.1±2.6	51±3	70.5±2.3	530±40	701±24	5.0±0.5	5.0±0.6	
23.	Crepaja	23±14	67±10	38±5	43.1±2.2	39±5	42±5	451±24	500±40	9.2±0.5	9.9±0.7	
24.	Gakovo	67±10	47±3	35.6±2.0	38.6±1.1	31.1±2.3	44.2±1.1	390±30	497±18	3.1±0.5	2.3±0.4	
25.	Zrenjanin	38±4	25.3±2.5	38.9±1.7	37.0±1.6	50.0±2.5	48±3	679±26	677±8	5.5±0.7	5.6±0.3	
26.	Padina	38±3	< 21	38.5±2.1	41±3	47.3±1.2	41±5	612±20	492±26	8.4±0.6	6.7±0.5	
27.	Deliblato	18.6±1.9	16.9±1.6	27.5±1.2	20.7±1.2	29.9±0.9	24.3±2.7	447±12	399±11	20.3±0.6	20.4±0.5	
28.	R. Šancevi	39±3	73±10	38.7±2.1	39.9±2.5	50±3	43±4	673±22	560±50	6.2±0.5	5.1±0.5	
29.	Bogojevo	20.6±2.7	17.2±1.6	27.0±0.8	23.5±1.8	29.5±1.7	24.1±2.7	438±19	428±12	4.8±0.5	4.49±0.23	
30.	Rusko Selo	67±13	30±3	31.9±2.1	25.1±2.3	37±4	35.4±1.8	550±50	621±20	11.0±1.1	11.9±0.7	
31.	Morovic	44±5	72±10	40.1±2.7	36.2±2.8	52.7±2.9	48±6	577±27	520±40	11.7±1.0	12.1±0.8	
32.	Ruma, Irig	51±10	68±4	43.1±2.5	47.0±2.1	43±3	64.8±2.0	510±30	758±24	5.2±0.6	7.9±0.6	
33.	A. Santic	29±4	< 21	35.2±1.9	39±4	43.0±2.0	37±3	501±26	380±21	4.5±0.8	4.4±0.4	
34.	Bavaniste	87±11	37±3	44 <u>±</u> 4	37.3±2.7	44±4	45.5±2.1	550±40	623±20	29.0±1.2	42.6±1.2	
35.	Pecinci, Popinci	57±9	38±4	41.0±2.0	34.1±1.6	49±3	47±3	540±40	569±19	9.4±0.7	9.9±0.6	
36.	R. Krstur	53±8	26.0±2.3	40.9±2.8	35.6±1.4	40.6±2.8	41.5±2.8	510±40	581±16	5.5±0.5	5.60±0.27	
37.	Zednik	85±13	< 20	41.2±2.5	36.6±1.9	38±4	35.9±2.3	420±40	392±21	6.0±0.8	5.5±0.4	
38.	Horgos	11.5±1.6	24±5	16.2±1.8	12.4±0.8	17.4±1.0	14.6±1.2	312±12	249±21	6.5±0.4	5.6±0.4	
39.	Ilandza	26±16	< 22	39.5±2.1	42.3±2.3	41±4	44±3	531±28	521±28	12.3±0.7	12.4±0.7	
40.	Kozjak	22.9±2.1	43±7	31.7±0.9	41±3	38.3±2.6	38.7±2.9	520±14	480±40	11.4±0.4	11.0±0.6	
41.	Zabalj	37±5	52±5	41.2±1.3	36.7±2.5	52.6±1.7	47.7±2.0	660±30	658±22	9.2±1.0	9.0±0.6	
42.	Vrsacki Ritovi	32.0±2.8	53±4	28.2±1.7	33.1±2.9	46.0±1.8	56.7±2.6	640±21	745±25	21.5±0.9	25.8±1.0	
		Koncentracije aktivnosti radionuklida, A [Bq/kg]										
-----	-------------------	--	----------------	----------	----------	-----------	------------	--------	--------	----------	----------	
		238	³ U	226	Ra	232	Th	40	K	137	Cs	
	Lokacije				DUBIN	A UZORKOV	VANJA ZEMI	LJIŠTA				
	Lonucije	30 cm	5cm	30 cm	5 cm	30cm	5 cm	30cm	5 cm	30 cm	5 cm	
43.	Begejci	64±10	61±4	40.1±2.7	45.1±2.6	41±5	57.9±1.4	570±50	786±26	5.2±0.6	6.7±0.6	
44.	B. Arandjelovo	48±9	70±10	26.5±2.5	30.0±1.8	36.9±2.6	41±5	502±27	590±50	5.0±0.4	6.5±0.6	
45.	Torda	51.4±9.9	< 22	34.3±2.7	37±3	39±4	46±3	570±30	590±30	8.8±0.7	10.1±0.6	
46.	Kumane	42±8	59±9	32.7±2.0	31.1±1.7	40.5±2.8	45±4	620±30	640±50	7.1±0.5	7.8±0.6	
47.	Donji Tovarnik	42±3	76±10	40.1±0.9	41.7±2.1	55.5±1.2	50±10	675±23	610±50	7.3±0.6	7.4±0.6	
48.	Obedska Bara	22.2±2.2	31.1±2.8	27.9±2.3	24.9±2.7	36.3±1.6	34.8±1.0	544±15	479±19	15.8±0.5	18.4±0.9	
49.	Indjija	77±13	< 20	43±6	38.6±2.0	49±4	35±13	530±50	488±26	5.5±0.8	4.5±0.4	
50.	Sr.Mitrovica	72±14	73±9	39.6±2.1	35.3±2.1	43±5	42.3±2.9	530±27	530±40	6.4±0.4	5.0±0.5	



Slika 3.28 Spektar poljoprivrednog zemljišta na gama-spektrometarskom sistemu B

GLAVA 4. Konvencionalne metode merenja radona i torona

Postoji veliki broj metoda merenja koncentracije aktivnosti radona i radonovih kratkoživećih potomaka u vazduhu, vodi ili zemljištu. U zavisnosti od raspoložive instrumentacije i cilja istraživanja može se meriti alfa, beta ili gama zračenje. Prema načinu uzorkovanja i trajanju merenja metode se mogu klasifikovati u tri vrste:

trenutne metode - služe za brzu ocenu koncentracije radona na datoj lokaciji i sprovode se u relativno kratkom vremenskom periodu u poređenju sa vremenskim rasponom fluktacije koncentracije radona. Vazduh (radon) se može uzorkovati na dva načina: direktnim usisavanjem u unutrašnju zapreminu instrumenta ili prikupljanjem u kontejnerima nakon čega se uzorci prenose u laboratoriju radi određivanja koncentracije aktivnosti radona i radonovih potomaka. Tipični kontejneri koji se mogu koristiti su: plastične vreće, metalni kanisteri ili stakleni kontejneri. Zapremine kontejnera su obično između 5 l i 20 l,

➢ kontinuirani monitoring - podrazumeva automatsko očitavanje koncentracije radona u kratkim vremenskim ciklusima za jedan duži period merenja. Rezultati takve serije merenja daju informacije o vremenskoj varijaciji koncentracije radona (dnevnoj, sezonskoj) i

dugovremenske metode - vrše se pomoću uređaja za integralno prikupljanje svih događaja koji se javljaju u dugom vremenskom periodu, reda veličine od nekoliko dana do nekoliko meseci. Rezultati merenja daju ocenu srednje koncentracije radona na datoj lokaciji za određeni interval merenja.

Razlikujemo aktivne i pasivne metode merenja koncentracije radona u zavisnosti od toga da li se u toku uzorkovanja koristi izvor napajanja električnom energijom ili ne. Izbor merne metode zavisiće od više faktora: dužine trajanja merenja, obima merenja, vrste informacije koja se želi dobiti merenjem (da li je to samo ocena koncetracije radona ili je to praćenje varijacija koncentracije radona i procena srednjih vrednosti), od troškova merenja, od tačnosti i preciznosti mernog uređaja kao i od ostalih performansi mernog sistema.

Merni instrumenti koji su najčešće u upotrebi su: alfa-spektrometri koji imaju mogućnost i trenutnog merenja i kontinuiranog monitoringa koncentracije radona; detektori tragova (plastični filmovi CR39 ili LR115) i ugljeni kanistri.

4.1 Metoda adsorpcije na aktivnom uglju

Aktivni ugalj se nalazi u kanistru, slika 2.1., koji se prilikom merenja otvara i postavlja na željenu lokaciju. Radon iz vazduha difuzijom dospeva u kanister i adsorbuje se na zrnima aktivnog uglja čije dimenzije približno odgovaraju maksimalnoj efikasnosti adsorpcije radona ²²²Rn. Radon adsorbovan na granulama aktivnog uglja se dalje raspada na kratkoživeće potomke: ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Po i ²¹⁰Pb. Relativno velik intenzitet gama linija radonovih potomaka ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi (²¹⁴Pb – 295 i 352 keV; ²¹⁴Bi – 609 keV) omogućava određivanje koncentracije radona gama spektrometrijski preko navedenih prelaza, jer se već nakon tri časa uspostavi ravnoteža između radona i potomaka u aktivnom uglju.



Slika 4.1 Spoljašnji izgled ugljenih kanistera (levo) i poprečni presek kanistra (desno) (1 - metalna kutija sa poklopcem; 2 - 70 ± 1 g usitnjenog 6 x 16 aktivnog uglja; 3 - metalna rešetka, propustljivosti 30 do 50 %; 4 - unutrašnji šireći prsten; 5 - lepljiva vinil traka za hermetičko zatvaranje i 6 - mekani umetak (stiropor ili sunđer) pričvršćen za poklopac)

Kalibracija ugljenih kanistera se vrši u radijumskoj komori koja služi za izlaganje ugljenih kanistera i drugih instrumenata za merenje radona poznatim koncentracijama radona i radonovih potomaka u kontrolisanim uslovima. Koristi se izvor ²²⁶Ra da bi se obezbedio stalan protok radona kroz komoru. Kontrolisani uslovi u komori podrazumevaju poznavanje i održavanje konstantnim sledećih parametara: relativne vlažnosti (10 do 90 %), temperature (0°C do 40°C), kondenzacije jezgara (10³ do 10⁶ /ml), koncentracije radona (370 do 37000 Bq/m³) i koncentracije radonovih potomaka. Ovi uslovi se kontinualno prate i očitavaju svakih sat vremena.

Gama-spektrometrijsko merenje zatvorenih ugljenih kanistera nakon ekspozicije vrši se pomoću detektora: poluprovodničkog ili scintilacionog. Efikasnost spektrometarskog sistema se pre svakog merenja određuje pomoću standardnog kanistera poznate radioaktivnosti i fonskog kanistera, istih dimenzija kao i kanisteri koji služe za merenje. Izrada standardnih kanistera se sprovodi na sledeći način: tečni radijum ²²⁶Ra poznate aktivnosti 20.5 nCi se suspenduje u 70 g aktivnog uglja nakon uklanjanja pokrovne rešetke, zatim se ugalj suši zagrevanjem i nakon toga zaptiva diskom od galvanizovanog metala umesto pokrovne rešetke. Hermetički zatvoreni standardni kanister se ostavlja 30 dana kako bi se uspostavila sekularna ravnoteža između radijuma, radona i potomaka. Ako se od brzine brojanja standardnog kanistera oduzme brzina brojanja fonskog kanistera za isto vreme merenja i razlika podeli sa poznatom aktivnošću standarda, dobija se efikasnost spektrometarskog sistema za dati dan merenja.

Postupci rukovanja ugljenim kanistrima pri uzorkovanju radona iz vazduha zatvorenih prostorija, kao i sastav i dimenzije ugljenih kanistera propisani su standardnim procedurama međunarodnih agencija (npr. Standardni Protokol EPA 520/5-87-005:1987.) [73]

Pre puštanja u promet svake proizvedene serije ugljenih kanistera izvrši se kalibracija kanistera. Prema EPA standardu svaka serija se obeležava različitom bojom vinil trake kojom se zatvara kanister. Svaki kanister se izmeri, odredi se vlažnost aktivnog uglja i podaci beleže sa šifrom utisnutom na poklopcu kanistera. Kalibracija kanistera se vrši u specijalizovanoj komori koja je stabilisana na odgovarajućim uslovima (temperatura, vlažnost) i u kojoj se održava konstantna koncentracija radona. Set od 30 kanistera se postavlja u komoru i eksponira na sledeći način: po 5 kanistera za 1, 2, 3, 4, 5 i 6 dana eksponiranja. Vreme otvaranja svakog kanistera se beleži. Postupak se ponavlja za svaku od vlažnosti: 20% vlage (niska vlažnost), 50% vlage (srednja) i 80% vlage (visoka vlažnost). Nakon isteka predviđenog vremena eksponiranja, kanistri se hermetički zatvaraju lepljenjem trake, uklanjaju se iz komore uz beleženje vremena zatvaranja. Tako zatvoreni stoje najmanje 3 sata da bi se uspostavila ravnoteža između potomaka i radona. Svaki kanister se meri 10 min na NaI detektoru čija je efikasnost prethodno određena. Nakon merenja izmeri se masa kanistera i odredi promena mase u odnosu na masu kanistera pre otvaranja. Za izračunavanje kalibracionog faktora koristi se sledeća formula:

$$CF = \frac{I - I_F}{T_S E RN DF}$$
(4.1)

gde su: CF - kalibracioni faktor, tj. brzina adsorpcije radona u (m^3/ks), I – ukupan spektralni intenzitet radonskih linija u (C/ks), I_F – spektralni intenzitet fona u (C/ks), T_s - vreme ekspozicije kanistra u (ks), E - efikasnost detektora u (C/(ks Bq)), RN - koncentracija radona u (Bq/m3) i DF - faktor raspada od polu-vremena ekspozicije do početka brojanja, koji se izračunava po formuli:

$$DF = e^{-0.693 t/T_{1/2}(Rn)}$$
(4.2)

gde su: t - vreme u danima proteklo od sredine eksponiranja do početka merenja na detektoru i $T_{1/2}(Rn)$ - period poluraspada radona (3.824 dana).

Na osnovu izračunatih vrednosti kalibracionih faktora za različite vlažnosti i različita vremena eksponiranja crtaju se dve zavisnosti kalibracionog faktora (krive vlažnosti). Prva zavisnost kalibracionih faktora od prinosa mase kanistera koji potiče od adsorpcije vlage iz vazduha (Slika 2.3) se dobija unošenjem vrednosti za konstantno vreme eksponiranja (2 dana = 48 h).



Slika 4.2 Zavisnost kalibracionog faktora od prinosa vlage pri konstantnom vremenu izlaganja 48h

Ukoliko je period ekspozicije duži od 48 h, inicijalni kalibracioni faktor CF mora biti korigovan pomoću druge krive koja predstavlja zavisnost brzine adsorbcije radona od vremena izlaganja, a za konstantnu vlažnost aktivnog uglja. Vlažnost uglja određuje se na osnovu prinosa vode (Tabela 4.1 i Slika 4.3).

Prinos vlage	Relativna vlažnost
manji od 1.0 g	20%
1.0 - 4.0 g	50%
veći od 4.0 g	80%

Tabela 4.1 Kriterijumi za odabir krive vlažnosti



Slika 4.3 Zavisnost faktora AF od vremena eksponiranja kanistera

Za dato vreme ekspozicije sa odgovarajuće krive vlažnosti očita se faktor podešavanja AF. Korekcija inicijalnog kalibracionog faktora se tada izvrši na osnovu formule:

Krajnji
$$CF = Inicijalni CF \frac{AF \ za \ dato \ vreme \ ekspozicije}{AF \ za \ dva \ dana \ (48h) \ ekspozicije}.$$
 (4.3)

Na osnovu jednačine (4.1) može se izvesti formula za izračunavanje merene koncentracije radona RN:

$$RN = \frac{I - I_F}{T_s E \ CF \ DF} \,. \tag{4.4}$$

4.2 Alfa-spektrometrijska metoda merenja radona i torona

Alfa spektrometrijska metoda je tehnika koja omogućuje kontinuirani monitoring koncentracije radona u vazduhu i samim tim i praćenje varijacije nivoa radona sa vremenom. Velike oscilacije koncentracije radona ukazuju na procese koji značajno utiču na porast koncentracije radona u vazduhu. U zavisnosti od mernih kompleta moguće je koristiti ovu metodu i za određivanje koncentracije radona u vodi i u zemljištu. Velika prednost ove metode je mogućnost elektronskog razdvajanja energije svake emitovane α čestice. Na taj način se egzaktno može odrediti od kog izotopa (²¹⁸Po, ²¹⁴Po itd.) potiče detektovana α čestica, razdvojiti "stari" od "novog" radona, radon od torona, signal od šuma (Slika 4.4). Još jedna pogodnost ove metode je ekstremno nizak i stabilan fon. Detektori alfa čestica su najčešće poluprovodnički

materijali (obično silicijum) u kojima se energija upadnog α zračenja direktno konvertuje u eliktrični signal. Ukoliko se posmatra samo pik koji potiče od izuzetno kratkoživećih potomaka (npr. ²¹⁸Po, perioda poluraspada 3 min), a ignorišu potomci sa relativno dugim periodom poluraspada koji zaostaju od prethodnih merenja (²¹⁴Po, perioda poluraspada 27 min), ovi detektori mogu da se koriste i za brzu ocenu koncentracije radona na odgovarajućoj lokaciji. Ovakav način rada je pogodan za iznalaženje pukotina u podnoj konstrukciji, odnosno tačaka ulaska radona u stambeni objekat.



Slika 4.4 Izgled alfa spektra radonovih i toronovih potomaka [74]

Na slici 4.5 prikazana je unutrašnja zapremina jednog mernog kompleta koji određuje koncentraciju radona alfa-spektrometarskom metodom (RAD7, proizvođača Durridge Company). Unutar uređaja je polusfera zapremine 0.7 l obložena sa unutrašnje strane materijalom koji je dobar električni provodnik. U centru polusfere nalazi se ravan silicijumski α detektor koji je jonski implantiran. Visoki napon održava razliku potencijala između unutrašnjeg provodnika i detektora od 2000 do 2500 V, stvarajući na taj način električno polje unutar zapremine ćelije. Električno polje usmerava pozitivno naelektrisane čestice ka površini detektora. Suv vazduh se provodi kroz unutrašnju mernu komoru brzinom protoka od 1.0 l/min pomoću automatske pumpe. Na ulasku u mernu komoru postoji filter koji sprečava ulaz radonovih potomaka, što znači da će rezultat merenja predstavljati koncentraciju radona u vazduhu a ne i koncentraciju njegovih potomaka. Jezgra ²²²Rn koja se nalaze u vazduhu unutar merne komore se raspadaju na jezgra ²¹⁸Po koja su pozitivno naelektrisani joni. Usled dejstva polja jezgra ²¹⁸Po se ubrzavaju ka detektoru na čijoj površini se talože. α čestice nastale raspadom kratkoživećeg ²¹⁸Po sa verovatnoćom od 50% ulaze u aktivnu zapreminu detektora i proizvode električni signal čiji je intenzitet proporcionalan energiji upadne α čestice. Naknadni raspadi istih jezgara proizvode β čestice koje se neće detektovati ili α čestice sa drugim iznosom energije. Alfa čestice energije 5.49 MeV-a nastale raspadom ²²²Rn ne registruju se u spektru

zbog toga što nastaju u vazduhu a ne na površini detektora. Atom radona je hemijski inertan i električno neutralan te ne može biti privučen na površinu detektora.



Slika 4.5 Unutrašnja zapremina mernog kompleta RAD7 [74]

Kod ovakvih uređaja korisnik može da odabere način rada instrumenta, dužinu trajanja merenja, broj ciklusa, izgled izveštaja, režim rada pumpe i sl. Nakon završenog ciklusa merenja podaci koji se dobijaju u vidu štampanog izveštaja su sledeći: srednja koncentracija aktivnosti radona (torona) za dati period merenja; standardna devijacija srednje koncentracije; datum i tačno vreme završetka merenja; temperatura i vlažnost unutar merne komore; stanje napunjenosti baterije; ukupan odbroj; odbroj po energetskim prozorima i procentualni udeo u ukupnom odbroju; histogrami srednjih koncentracija po zadatim ciklusima i kumulativni alfa spektar.



Slika 4.6 Izgled štampanog izveštaja na RAD7 - dnevne varijacije koncentracije aktivnosti radona u zatvorenoj prostoriji ciklus 48 h, intervali merenja 1 h

Ukoliko se na merenim lokacijama pored radona detektuje i toron, tada se kao rezultat merenja dobijaju kombinovani spektri i sam spektrometar prilikom izračunavanja radonske koncentracije uzima u obzir i doprinos torona radonskim linijama kako bi se korigovao odbroj koji potiče od ²¹²Bi.

Patološki spektri koji nastaju usled elektronskog šuma, neispravnog rada spektrometra, vibracija, previsokih temperatura ili oštećenja same površine detektora se lako mogu uočiti i razlikovati od regularnih alfa spektara jer dolazi do pomeranja linija, preteranog širenja ili razmazivanja linija, povećanog odbroja u repu linija ili izostanka odbroja i pri dužem vremenu merenja. Pojava pika na 5.3 MeV-a usled taloženja²¹⁰Pb na površini detektora, nakon nekoliko godina regularnog rada spektrometra ili nakon izlaganja veoma visokim radonskim nivoima, ne predstavlja problem pošto se pik nalazi van energetskog prozora od interesa i ne doprinosi fonu.

Za dovoljno precizna ponovna merenja niskih koncentracija neophodno je samo produvati instrument "svežim" vazduhom u vremenskom roku od 10 min.

Za merenje koncentracije radona u površinskim slojevima zemljišta postoji poseban dodatak mernom kompletu, a to je zašiljena metalna cev dužine 40 cm sa prorezima na vrhu koji su predviđeni za difuziju radona iz zemljišta. Radom pumpe usisava se vazduh iz zemljišta koji najpre prolazi kroz kolonu za sušenje a zatim se uvlači u mernu komoru (Slika 4.7).



Slika 4.7 Merni komplet RAD7 za merenje emanacije radona iz zemljišta [74]

Postupci rukovanja ovakvim uređajima, kao i način uzorkovanja radona iz vazduha, vode i zemljišta propisani su standardnim procedurama međunarodnih agencija (Standardni Protokol EPA 402-R-92-004) [75].

Merni kompleti mogu imati posebne dodatke za merenje koncentracije radona u vodi: koristi se sistem upumpavanja vazduha u uzorak vode kako bi radon bio istisnut i preveden u komoru za merenje (Slika 4.8). Takav sistem je zatvoren sistem u kome zapremina vazduha i vode konstantni i nezavisni od brzine protoka. Ovaj sistem dostiže ravnotežu u roku od 5 min, posle kog vremena više nema radona koji bi se mogao izdvojiti iz vode. Efikasnost izdvajanja radona zavisi od temperature i iznosi oko 99% za uzorak zapremine 40 ml i oko 94% za uzorak zapremine 250 ml. U toku rada sa ovakvim sistemom uzorkovanja radona iz vode neophodno je konstantno pratiti i proveravati relativnu vlažnost unutar merne komore instrumenta i snižavati je do ispod 10%. Ukoliko je vlažnost veća od pomenute rezultati merenja nisu realni, te se merna komora mora produvati kako bi se relativna vlažnost smanjila do prihvatljivog nivoa.

Ukoliko se merenje ne vrši odmah po punjenju vode, koncentracija radona će opadati sa vremenom usled raspadanja jezgara radona (period poluraspada 3.824 dana) i potrebno je izvršiti korekciju rezultata merenja na raspad.



RADH₂O Schematic

Slika 4.8 RAD H₂O merni komplet [74]

4.2.1 Merenje koncentracije aktivnosti torona pomoću RAD7

Merenje koncentracije aktivnosti torona u zatvorenim prostorijama pomoću RAD7 se realizuje u Thoron protokolu pri čemu instrument radi u Sniff modu u ciklusima po 5 minuta. Ovaj mod je pogodan za brzo skeniranje terena i pronalaženje pukotina i mesta sa dotokom radona i torona. Problem kod određivanja koncentracije aktivnosti torona je velika merna nesigurnost zbog same prirode ovog izotopa (kratak period polu-raspada $T_{1/2}=55,6$ s) i neravnomerne raspodele ovog gasa u prostoriji. Izmerena vrednost mora biti korigovana na raspad torona u unutrašnjoj zapremini instrumenta i dodatnoj zapremini izvan instrumenta (gumene cevi, filteri, merač protoka gasa, odvlaživač). Ova korekcija je značajna i povisi izmerenu koncentraciju aktivnosti torona dva puta:

$$C=R x D x V \tag{4.5}$$

gde su: C – koncentracija aktivnosti torona u [Bq/m³]

R – izmerena koncentracija aktivnosti torona u [Bq/m³]

 $D = 1+\lambda V_2/q - korekcija na raspad torona u aktivnoj zapremini detektora RAD7: <math>\lambda$ - konstanta raspada torona (0.748 min⁻¹), V_2 – unutrašnja zapremina RAD7 (0.75 l) i q – brzina protoka gasa koja se pri svakom merenju mora odrediti meračem protoka (u opsegu od 0.7 - 1 l/min za automatsku pumpu instrumenta). Za navedene podatke može se proceniti korekcija D= 1.5844.

V – korekcija na gubitke torona u ukupnoj spoljašnjoj zapremini V_1 do ulaska u detektor RAD7 (cevi, filteri, merač protoka vazduha, odvlaživač):

$$V = \frac{1}{e^{-\frac{\lambda V_1}{q}}} \tag{4.6}$$

Kada se proračunavaju ove korekcije potrebno je znati u kojoj eksperimentalnoj postavci je kalibrisan instrument RAD7 za merenje torona i koliko je iznosila dodatna zapremina V_1 na osnovu koje je procenjena kalibraciona konstanta:

 $R = \langle Neto odbroj u B prozoru [counts/minutes]/CALIB faktor(u funkciji RH vazduha) (4.7)$

Da se ne bi uvodile dodatne korekcije potrebno je koristiti istu postavku (Slika 4.9) pri svakom merenju koncentracije aktivnosti torona u vazduhu.



Slika 4.9 Eksperimentalna postavka za kalibraciju RAD7 za merenje torona [76]

4.3 Detektori tragova

Princip detekcije bazira se na tragovima koje alfa čestice proizvode u materijalima kao što su plastični filmovi od nitratne celuloze (LR-115) ili alil-diglikol-karbonata (CR-39). Plastični filmovi malih dimenzija se obično eksponiraju unutar plastičnih difuzionih komora (Slika 4.12) koje imaju ulogu difuzionog filtera koji sprečava ulazak radonovih potomaka a propušta samo radon. Međutim ovi detektori se mogu eksponirati i van difuzione komore kada su direktno izloženi ambijentalnoj koncentraciji radona i radonovih potomaka u vazduhu. Nakon izlaganja, nastali tragovi se uvećavaju hemijskim ili elektrohemijskim nagrizanjem, najčešće u rastvoru baze NaOH. Na taj način postaju vidljivi pod mikroskopom pa se gustina tragova može odrediti manuelnim ili kompjuterizovanim brojanjem tragova. Ovom metodom je isključena detekcija beta čestica i gama zračenja i usled toga je korekcija na fon nepotrebna. Granica detekcije za radon ²²²Rn je reda veličine 2 Bq/m³. Prednosti ove metode su jednostavnost, praktičnost i konačno jeftina cena.

Prolazak teške pozitivno nalektrisane čestice (jona, alfa čestice) kroz dielektrik u čvrstom stanju dolazi do kidanja polimerskih lanaca (usled Kulonove interakcije sa orbitalnim elektronima) (Slika 4.10) usled čega se formiraju slobodni radikali. Kada se plastika nakon toga tretira nagrizanjem (alkalnim hidroksidima, vodenim rastvorima NaOH ili KOH uz dodatak alkohola) oblast prekida lanaca se širi i uvećava za faktor 10²-10³. Na taj način tragovi postaju vidljivi (dobijaju oblik jama) i pod običnim mikroskopom i trajni (termostabilni).



Slika 4.10 Kidanje polimernih lanaca pri prolasku alfa čestice

Oblik i dijametar "nagrizene jame" zavisi od dva parametra: nagrizajućih karakteristika plastične sredine označenih kao njihova *brzina nagrizanja v_B i brzine nagrizanja tragova v_T* za dati nagrizivač korišten pod odgovarajućim uslovima: tip, molarnost i temperatura nagrizivača [77]. Odnos ove dve brzine predstavlja parametar bitan za određivanje karakteristika nagrizanja (efikasnost nagrizanja, kritični ugao nagrizanja θ_c , itd.) (Slika 4.11).



Slika 4.11 Uslov za nastalo oštećenje nagrizanjem postane trag: upadni ugao čestice > $\theta_c = \arcsin(V_B/V_T)$ [25]

Veličina i oblik tragova zavise i od dužine trajanja nagrizanja što se može uočiti u toku višečasovne ekspozicije (Slika 4.12).



Slika 4.12 Izgled i veličina tragova u zavisnosti od proteklog vremena od početka nagrizanja

Način brojanja tragova (mikroskopski ili automatski) utiče i na odabir metode nagrizanja. Hemijskim nagrizanjem nastaju tragovi u obliku jame (Slika 4.13 stage 1.), dok elektrohemijski postupak nagrizanja obrazuje tragove u vidu drvenog stabla (Slika 4.13 stage 2.) koji su većih dimenzija i samim tim pogodniji za manuelno očitavanje.



Stage 2 - Tree Formation

Slika 4.13 Različiti oblici nagrizanja

Hemijsko nagrizanje (CE) se sprovodi u termostatiranom kupatilu na temperaturama u opsegu od 40°C do 70°C (izuzetno u nekim slučajevima i do 90°C) uz korišćenje vodenog rastvora NaOH (ili KOH) molarnosti od 2 do 6 M (npr. za 6 M NaOH, 6 x 40 = 240 g NaOH u 1 l vodenog rastvora). Tipično vreme nagrizanja je od 2 do 6 h. Povećanje molarnosti, vremena trajanja nagrizanja i temperature utiče na veličinu nagrizene šupljine. Plastični filmovi se unose u kupatilo na specijalnim nosačima (Slika 4.14) koji služe za tretiranje velikog broja filmova uz mogućnost rotacije za ubrzani proces nagrizanja. Nakon završenog postupka, detektori se uklanjaju i peru u destilovanoj vodi i ostavljaju nekoliko minuta u malom ultrasoničnom kupatilu ili destilovanoj vodi da bi se odstranili ostaci nagrizanja. Nakon sušenja detektori su spremni za brojanje pod optičkim mikroskopom. Dijametar nagrizenih tragova je u proseku nekoliko µm, međutim može da se uveća do 50 µm ili više nakon produženog nagrizanja.

Osnovni mehanizam elektrohemijskog nagrizanja je primena visoko frekventnog električnog polja za razdvajanje suprotno naelektrišanih jona u polju. Takvo polje dovodi do električnog proboja i varničenja na krajevima nagrizenih tragova u dielektričnoj sredini, odnosno plastici. Finalna veličina ECE nagrizenih mrlja može biti oko 100 –200 µm.

Signal koji se dobija u detektoru tragova jeste broj tragova po jedinici površine, odnosno gustina tragova ρ [broj tragova/cm²]. Ako pretpostavimo da su tragovi ravnomerno raspoređeni po površini detektora, tada se može definisati sledeća funkcija:

$$\frac{d\rho}{dt} = K \frac{C(t)}{\tau} = A(t) K$$
(4.8)

gde su: K – kalibracioni faktor koji predstavlja brzinu stvaranja tragova, odnosno odgovor datog detektora na koncentraciju radona, C(t) – koncentracija radona u vazduhu u okolini detektora, τ - period polu-raspada radona i A(t) – koncentracija aktivnosti radona.

Ako je vreme ekspozicije trag detektora duže od 3 h, formula (4.5) se može aproksimirati [78] na sledeći način:

$$K = \frac{\rho}{\langle A_0 \rangle t_e} \tag{4.9}$$

gde je $\langle A_0 \rangle$ srednja koncentracija aktivnosti radona za period eksponiranja. Ako se uzme u obzir da brzina produkcije tragova u datom plastičnom filmu zavisi od efektivnog dometa alfa

čestica koje emituje određeni radionuklid, u ovom slučaju radon i od efikasnosti nagrizanja [79], tada se može teorijski proračunati gornja granica kalibracionog faktora K za određenu plastiku. Za CR39 ova procenjena vrednost iznosi:

$$K \le 3.2 br. \text{tragova/(cm3 kBq h/m3)}$$
 (4.10)

U ovom radu dati su rezultati merenja koncentracije radona u vazduhu zatvorenih prostorija izvršena pomoću trag detektora CR39 koji predstavljaju najčešće korišćen alfa trag detektor u čvrstom stanju (SSNTD-Solid State Nuclear Track Detectors). Dimenzije detektora koji je u toku merenja bio prilepljen za poklopac plastične difuzione komore su 10x10x1 mm. Detektor je osetljiv samo na alfa zračenje i njegova osetljivost iznosi 2.9 tragova/(cm³ kBqh/m³). Detektori su bili nagrizani 25% rastvorom NaOH, 4 časa na konstantnoj temperaturi od 90°C. Tragovi su očitani i obrađeni pomoću RADOSYS 2000 elektronske opreme u Mađarskoj, koja uključuje: RADOBATH 2000 (termostatirano kupatilo za hemijsko nagrizanje tragova na detektorima, RADOMETER 2000 opremu za čitanje tragova sa B&W CCD kamerom i kompatibilnim PC računarom).



Slika 4.14 Merni komplet RadoSys kompanije iz Mađarske [80] koji je korišćen u merenjima čiji su rezultati prikazani u ovom radu (Poglavlje 4.4)

Radosys kompanija proizvodi i komplet RADUET za merenje koncentracije aktivnosti torona na bazi detektora tragova CR39. Princip rada se sastoji u sledećem: istovremeno se eksponiraju dve difuzione komore od kojih je jedna propustljiva samo za radon, a druga ima dodatne otvore sa elektroprovodljivim sunđerom i propustljiva je za oba gasa. Jednostavnim linearnim upoređivanjem dobijenih vrednosti se dobija koncentracija aktivnosti torona. Metoda je atestirana i razvijena u saradnji sa NIRS Institutom (National Institute of Radiological

Sciences) iz Japana. Detektori se postavljaju na rastojanju 10-20 cm od zidova, na 1 m visine od poda u prizemnim prostorijama. Povišene koncentracije aktivnosti torona se očekuju u objektima građenim od materijala sa povišenim sadržajem torijuma²³²Th.



Slika 4.15 Merni komplet RADUET za merenje torona RadoSys kompanije iz Mađarske [80]

4. 4 Rezultati merenja

Rezultati merenja koncentracije aktivnosti radona merenih pomoću tri opisane metode merenja: ugljeni kanistri, alfa-spektrometarska metoda i trag detektori prikazani su u Tabelama od 4.1 do 4.11. Ovi rezultati su publikovani u vodećim stranim i domaćim časopisima ([81, 82, 83, 84, 85, 86, 87 i 88]). Pošto postoji veliki broj merenja pojedinačni rezultati nisu prikazani tabelarno, nego je dat pregled srednjih koncentracija, maksimalne i minimalne koncentracije, standardne devijacije i vreme trajanja merenja (eksponiranja). Pregled rezultata merenja može se razvrstati u sledeća poglavlja:

4.4.1 Rezultati merenja koncentracije radona u vazduhu i zemljištu metodom ugljenih kanistera na području opštine Novi Sad

Rezultati merenja koncentracije aktivnosti radona u vazduhu zatvorenih prostorija, koja su izvršena na oko 400 različitih lokacija na području opštine Novi Sad mogu se predstaviti

tabelarno (Tabela 4.2) i pomoću ln-normalne raspodele (Slika 4.16). Merenja su izvršena u Laboratoriji za nuklearnu fiziku, Departmana za fiziku, PMF u Novom Sadu u periodu od 1992. godine do danas. Primenjeno je optimalno vreme eksponiranja ugljenih kanistera od 48 h. Koncentracije aktivnosti radona određene su na osnovu intenziteta gama-linija kratkoživećih potomaka radona ²¹⁴Bi i ²¹⁴Pb. Gama-spektrometrijska merenja izvršena su na visoko rezolucionom germanijumskom detektoru velike čistoće, nominalne efikasnosti 22% koji je postavljen u zaštitnu komoru od gvožđa zidova debljine 25 cm. Efikasnost detektora je bila određena preko ²²⁶Ra referentnog izvora proizvođača EPA. Nakon zatvaranja eksponiranih kanistera sa gama-spektrometrijskim brojanjem se započinjalo za otprilike 3 h (vreme uspostavljanja ravnoteže).

broj	A _{SR}	σ	Geo.A _{SR}	Geo.σ	A _{min}	A _{max}
merenja	[Bq/m ³]					
381	52	75	28	3	1.15	544

Tabela 4.2 Statistika rezultata merenja koncentracije radona metodom ugljenih kanistera



Slika 4.16 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti radona (400 merenja ugljenim kanistrima, za period 1992-2006)

Analizom rezultata merenja utvrđeno je da je 5% merenja iznad akcionog nivoa od 200 Bq/m³. Ovaj nivo radona je zakonski propisan akcioni nivo za preduzimanje sanacionih mera. Značajno povišene koncentracije aktivnosti radona (iznad 400 Bq/m³) predstavljaju 1% od ukupnog broja merenja. Ln-normalna raspodela koncentracije radona je očekivana za prirodne procese kao što je emanacija radona iz zemljišta i nakupljanje u vazduhu zatvorenih prostorija.

Emanacija radona iz zemljišta je merena pomoću čelične sonde ukopane u zemlju do 70 cm dubine sa zatvorenim gornjim krajem i metalnom mrežicom na donjem kraju na koju se

postavlja i eksponira ugljeni kanister (slika 4.17). Vreme ekspozicije ugljenih kanistera je dva dana ili 48 h. Pošto zemljište predstavlja dominantan izvor radona, sa lokacija gde je merena emanacija radona uzorkovano je zemljište i nakon odgovarajućih priprema određene su koncentracije prirodnih i veštačkih radionuklida gama-spektrometrijskim metodom.

U periodu maj 1997 – decembar 2001 u Laboratoriji za nuklearnu fiziku, Departmana za fiziku, PMF u Novom Sadu izvršeno je 70 merenja koncentracije aktivnosti emaniranog radona na području opštine Novi Sad. Rezultati tih merenja dati su u Tabeli 4.3.



Slika 4.17. Izgled sonde za merenje emanacije radona: 1 - čelična cev, 2 – ugljeni kanister, 3 - metalna mrežica, 4 – površinski sloj zemljišta

U drugoj koloni Tabele 4.3. dati su brojevi mikrolokacija (broj kanistera koji su bili raspoređeni na istoj lokaciji). Treća kolona predstavlja maksimalne vrednosti koncentracija aktivnosti radona na datoj lokaciji (A_{max}), četvrta kolona minimalnu vrednost (A_{min}), peta kolona predstavlja aritmetičku srednju vrednost (A_{SR}), dok je poslednja kolona standardna devijacija (σA) distribucije koncentracija radona na datoj lokaciji. Na osnovu visokih vrednosti standardnih devijacija zaključujemo da i na pojedinačnim lokacijama dolazi do znatnih variranja koncentracije radona.

R.Br	Lokacija	Broj mikrolo kacija	A _{max} [Bq/m ³]	A _{min} [Bq/m ³]	A _{SR} [Bq/m ³]	σA [Bq/m ³]
1.	Avijatičarsko naselje	20	2350	44	725	582
2.	Liman	5	1454	108	666	501
3.	Svilara	5	1071	127	486	313
4.	Detelinara	4	1108	317	680	282
5.	Bistrica	4	925	178	530	299
6.	Somborska pruga	3	2056	1206	1580	354
7.	Stari grad	2	585	573	579	6
8.	ugao Radničke i Cara Lazara	4	2535	1539	1944	375
9.	Hotel SPC Vojvodina	2	240	230	235	5
10.	Telep, Heroja Pinkija	6	1799	511	1085	467
11.	Rumenka	5	3247	484	2010	908
12.	Kać	2	2623	1452	2087	585
13.	Kovilj	2	2033	1439	1736	297
14.	Petrovaradin	1			242	11
15.	Veternik	1			670	17
16.	Futog	2	1150	483	816	333
17.	Kisač	2	2034	1184	1609	425
18.	Čenej	1			956	19

Tabela 4.3 Koncentracije aktivnosti radona emaniranog iz zemljišta

Emanacija radona iz zemljišta je u toku 2005.godine merena i kalibrisanim alfa spektrometrom DURRIDGE *RAD* 7 koji ima posebne dodatke za merenje koncentracije radona u površinskom sloju zemljišta. Rezultati merenja prikazani su u Tabeli br.4.4. Obzirom da su merenja sa RAD7 trajala nekoliko sati na licu mesta u prepodnevnim časovima dobijeni rezultati su korigovani na dnevni (24 časovni) prosek.

Oznaka lokaliteta	Lokacija	koncentracija radona za 0.5 h [Bq/m³]	koncentracija radona za 48 h [Bq/m ³]
K 34	Detelinara	104±52	312±156
K 34	Detelinara	141±13	423±39
K 34	Detelinara	370±189	1110±567
K 34	Detelinara	245±14	735±42
K 34	Detelinara	155±44	465±132
K 33	Detelinara	1500 ± 866	4500±2598
K 37	Detelinara	1150±334	3450±1002
K 35	Detelinara	113±26	339±78
K 35	Detelinara	409±117	1227±351
K 35	Detelinara	313±22	939±66

Tabela 4.4 Rezultati merenja koncentracije radona u zemljištu mernim kompletom RAD7

Oznaka Lokacija lokaliteta		koncentracija radona za 0.5 h [Bq/m ³]	koncentracija radona za 48 h [Bq/m ³]
K 35	Detelinara	279±84	837±252
K 35	Detelinara	285±10	855±30
K 35	Detelinara	222±91	666±273
K 32	Detelinara	158±66	474 ± 198
K 32	Detelinara	186±60	558±180
K 24	Detelinara	413±69	1239±207
K 24	Detelinara	877±305	2631±915
K 24	Detelinara	723±192	2169±576
K 4	Detelinara	444±41	1332±123
K 4	Detelinara	330±45	990±135

Na osnovu izmerenih rezultata dobijena je distribucija koncentracija aktivnosti radona emaniranog iz zemljišta koja je data na Slici 4.18. Od minimalne vrednosti od 141 Bq/m³ do maksimalne od 6022 Bq/m³, distribucija je pretežno ln-normalna sa blagim pomeranjem ka nižim koncentracijama aktivnosti. Srednja vrednost koncentracije aktivnosti radona iznosi 1361 Bq/m³ sa standardnom devijacijom od 1007 Bq/m³.



Slika 4.18 Raspodela koncentracije aktivnosti ²²²Rn emaniranog iz građevinskog zemljišta za područje Novog Sada

Sa svih mikrolokacija uzeti su uzorci zemljišta i metodom visokorezolucione gama spektrometrije određene su koncentracije aktivnosti ²³⁸U uranijuma i ²²⁶Ra radijuma. Statistika ovih rezultata: srednje vrednosti, standardne devijacije i opsezi izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti data je u tabeli br. 4.5. Za sve uzorke proračunate su srednje vrednosti koncentracija aktivnosti: A_{SR} (²³⁸U)= 46 ± 17 Bq/kg i A_{SR} (²²⁶Ra) = 34 ± 8 Bq/kg, što predstavlja uobičajeni nivo koncentracija ovih radionuklida za vojvođansko zemljište. Aktivnosti ²³⁸U i ²²⁶Ra su u ravnoteži i rasipanja rezultata oko srednjih vrednosti mnogo su manja nego u slučaju merenja emanacije radona. Pošto nisu utvrđene nikakve korelacije između koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra u zemljištu i intenziteta emanacije radona iz zemljišta – korelacioni faktor r=0.149 (Slika 4.19) može se zaključiti da ovaj prirodni proces dominantno zavisi od rasporeda stena u zemljištu, poroznosti zemljišta i tokova podzemnih voda [89].

radionuklid	Asr [Bq/kg]	σ(Asr) [Bq/kg]	Opseg [Bq/kg]
⁴⁰ K	509	93	317-718
²²⁶ Ra	34	8	15.9 - 66
²³² Th	39	10	17.8 - 61.6
²³⁸ U	46	17	20 - 130
¹³⁷ Cs	6	4	0.6 - 16.5

Tabela 4.5 Pregled rezultata gama-spektrometrijskih merenja uzoraka zemljišta sa istih lokacija na kojima je ispitivana emanacija radona iz zemljišta



Slika 4.19 Korelacija koncentracija aktivnosti radijuma²²⁶Ra u zemljištu i koncentracija aktivnosti radona²²²Rn emaniranog iz zemljišta

4.4.2 Rezultati merenja koncentracije radona trag detektorima CR39 i prva radonska mapa Vojvodine

U cilju izrade prve radonske mape Vojvodine, izvršena su merenja koncentracije aktivnosti radona pomoću CR39 trag detektora na oko 3000 različitih lokacija u svih 45 opština u periodu decembar 2002.-mart 2005. Projekat je bio finansiran od strane Pokrajinskog sekretaijata za zaštitu životne sredine i održivi razvoj AP Vojvodine. Vreme eksponiranja trag detektora iznosio je 90 dana u pretežno zimskim vremenskim uslovima decembar - mart. CR-39 trag detektori su postavljani u prizemnim prostorijama, u dnevnoj ili spavaćoj sobi (gde ljudi najčešće borave), na visini do jednog metra u odnosu na pod, daleko od vode ili izvora grejanja. Bazirano na iskustvu sa prethodnim merenjima koncentracija radona, a u cilju procene gornje granice koncentracije radona i maksimalnog izlaganja stanovništva radonu, izabrane su lokacije u prigradskim seoskim naseljima i kuće starog tipa gradnje sa zemljanim podovima ili loše izolovanim betonskim konstrukcijama. Broj detektora po opštini je određen prema broju stanovnika i naseljenosti opštine. Distribucija detektora je izvršena preko profesora fizike i učenika četvrtih razreda gimnazija prirodno-matematičkog smera iz svake opštine u Vojvodini, što je za njih predstavljalo izazov i jedini način da se bave eksperimentalnim radom iz oblasti radioekologije. Takođe je uspeh ovog projekta i edukacija stanovništva o problemu radona i radijacionom riziku od udisanja radona i njegovih potomaka.

Rezultati merenja koncentracije radona trag detektorima u periodu decembar 2002 – mart 2003 godine dati su u Tabelama 4.6 i 4.7. Rezultati 1000 merenja koncentracije aktivnosti radona u stambenim objektima u Vojvodini (ustvari 968 pošto su neki trag detektori zagubljeni i nisu vraćeni na očitavanje) pokazuju Ln-normalnu distribuciju sa geometrijskom srednjom vrednošću od 104.2 Bq/m³ (Slika 4.20). Prva radonska mapa Vojvodine koja je dobijena prikazom srednjih koncentracija radona po opštinama Vojvodine prikazana je na Slici br.4.21.

No.	Opština	Geo.Mean	Geo.o	Broj merenja	Min.	Max.
_						[Bq/m [*]]
1.	Novi Sad	86.6	2.7	86	10	445
2.	Pančevo	93.8	1.9	50	26	668
3.	Sombor	117.5	2.2	48	3/	/26
4.	Subotica	50.4	2.3	49	11	449
5.	Zrenjanin	120.7	2.1	53	24	893
6.	Sr. Mitrovica	123.8	2.3	40	19	463
7.	Vršac	79.9	2.0	33	15	385
8.	Backa Palanka	116.5	2.2	32	17	378
9.	Inđija	106.5	2.8	29	18	792
10.	Kikinda	106.2	2.1	32	20	306
11.	Ruma	174.7	2.1	28	26	566
12.	Stara Pazova	181.8	2.2	29	16	707
13.	Kula	121.0	2.0	24	47	437
14.	Vrbas	119.8	2.2	27	15	377
15.	Alibunar	64.3	2.5	22	15	627
16.	Bačka Topola	124.8	1.6	18	54	319
17.	Bečej	94.4	2.0	30	24	309
18.	Kanjiža	79.5	2.0	20	30	286
19.	Kovin	117.0	2.6	20	28	622
20.	Nova Crnja	150.8	1.7	16	49	364
21.	Novi Bečej	75.1	2.2	10	31	323
22.	Odžaci	86.6	2.0	24	30	305
23.	Senta	104.1	2.0	20	17	303
24.	Sečanj	174.2	1.9	21	30	415
25.	Šid	139.2	2.4	20	16	438
26.	Titel	95.7	2.0	13	21	281
27.	Žabalj	143.5	1.9	10	53	658
28.	Žitište	72.6	2.4	10	20	323
29.	Ada	51.4	4.4	10	10	402
30.	Apatin	44.2	3.0	3	19	151
31.	Bač	122.2	2.2	9	23	372
32.	Bački Petrovac	115.8	2.5	15	28	380
33.	Bela Crkva	191.8	2.3	9	58	408
34.	Beočin	150.6	2.2	9	45	454
35.	Čoka	141.4	1.5	10	73	264
36.	Irig	76.5	2.3	10	33	521
37.	Kovačica	85.6	2.2	5	26	198
38.	Mali Idjoš	114.7	2.3	10	41	234
39.	Novi Kneževac	100.2	2.0	9	26	202
40.	Opovo	105.7	1.8	8	57	317
41.	Pećinci	142.5	1.8	11	46	338
42.	Plandište	95.4	1.8	7	43	212
43.	Srbobran	121.6	2.1	10	43	303
44.	Sremski Karlovci	103.1	2.7	8	30	453
45.	Temerin	66.7	2.3	11	14	372

Tabela 4.6 Rezultati merenja koncentracije radona CR39 u periodu 12. 2002 – 03. 2003.

Tabela 4.7 Aritmetička i geometrijska srednja vrednost merenja koncentracije radona (CR39; Vojvodina; decembar 2002 – mart 2003)

Broj merenja	A _{SR}	σ	Geo.Mean	Geo. o	Max
	[Bq/m ³]				
968	144	120	104.2	2.3	893



Slika 4.20 Ln-normalna raspodela vrednosti koncentracija radona



Slika 4.21 Prva radonska mape Vojvodine

Rezultati merenja pokazuju da je skoro 20% merenja u intervalu od 200 Bq/m³ do 400 Bq/m³, a 4% od ukupnog broja merenja su povišene koncentracije radona iznad 400 Bq/m³. Za prvu godinu merenja (period decembar 2002. – mart 2003.) geometrijska srednja vrednost koncentracija aktivnosti radona iznosi 104.2 Bq/m³ sa standardnom devijacijom 2.3 Bq/m³. Prema literaturi [90] srednja godišnja koncentracija aktivnosti radona može se proceniti na osnovu formule:

$$C_0 = 0.73 \times Geo.Mean \tag{4.11}$$

gde je 0.73 sezonski korekcioni faktor za trajanje merenja od tri meseca počevši od decembra.

Prema [1] formula na osnovu koje se može proračunati efektivna doza od izlaganja radonu ima oblik:

Dose
$$[nSv] = C_0 (\varepsilon_r + \varepsilon_d F) O,$$
 (4.12)

gde je C_0 is srednja godišnja koncentracija radona u Bq/m³, ε_r (0.17 nSv/h po Bq/m³) i ε_d (9 nSv/h po Bq/m³) su konverzioni faktor za radon i kratkoživeće potomke respektivno, F je faktor ravnoteže između radona i potomaka (F < 1) i O je okupacioni faktor (vreme koje prosečan čovek provede u zatvorenom prostoru u toku jedne godine O = 0.7 x 8.76 x 10³ h).

Na osnovu gore navedenih relacija i vrednosti srednje godišnje koncentracije radona od 76.1 Bq/m³, godišnja efektivna doza za celo telo iznosi 4.3 mSv i na osnovu pretpostavki predstavlja maksimalno izlaganje radonu. Ova vrednost može se uporediti sa preporučenim akcionim nivoom od 3-10 mSv/godišnje [34] i svetskim prosekom doze za udahnute radionuklide od 2.5 mSv/godišnje [91, 92].

Rezultati merenja koncentracije aktivnosti radona za period decembar 2003-mart 2004. godine dati su u Tabelama 4.8 i 4.9. Ln-normalna raspodela koncentracija za ovaj period prikazana je na slici 4.22, a radonska mapa Vojvodine na slici 4.23.

Tabela 4.8 Statistički podaci koncentracije radona (CR39; Vojvodina; decembar 2003 - mart 2004)

A _{sr} [Bq/m ³]	n broj merenja	Geo Mean [Bq/m ³]	Geo σ [Bq/m ³]	Amax [Bq/m ³]
102	941	68.1	2.6	599 Bela Crkva

Histogrami izmerenih koncentracija aktivnosti radona ukazuju na grubu ln-normalnu distribuciju, sa značajnim pomeranjem ulevo (slika br.4.21), što znači da je najveći broj merenja u oblasti nižih vrednosti koncentracija aktivnosti radona.



Slika 4.22 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti radona (CR39; Vojvodina; decembar 2002 – mart 2003)

Tabela 4.9 Procentualna raspodela koncentracija aktivnosti radona (CR39; Vojvodina; decembar 2002 – mart 2003)

interval koncentracija [Bq/m ³]	broj lokacija	procentualna zastupljenost u Vojvodini
<100	570	61%
100-200	247	26%
200-400	114	12%
>400	10	1%



Slika 4.23 Radonska mapa Vojvodine(CR39; decembar 2002 – mart 2003)

Merenja koncentracije radona u Vojvodini sa serijom od 1000 CR39 trag detektora su ponovljena i 2004. godine. Rezultati, raspodele i radonska mapa dati su u Tabeli 4.10 i na Slikama br.4.24 i 4.25

Tabela 4.10 Rezultati merenja koncentracije radona za celu Vojvodinu (CR39; decembar 2003 – mart 2004)

Broj merenja	A _{SR} [Bq/m ³]	Standardna devijacija σ [Bq/m ³]	Geo Mean [Bq/m ³]	Geo σ [Bq/m³]	A _{max} [Bq/m ³]
926	103±3	92	73.3	2.3	896 (Kula)

11% merenja prelazi graničnu vrednost od 200 Bq/m³, dok 1% merenja pokazuje izuzetno povećanu koncentraciju radona. Vlasnici stanova sa povećanom koncentracijom radona su lično obavešteni o neophodnosti preduzimanja zaštitnih mera.



Slika 4.24 Ln-normalna raspodela koncentracija aktivnosti radona (CR39; Vojvodina; decembar 2002 – mart 2003)



Slika 4.25 Radonska mapa Vojvodine(CR39; decembar 2003 - mart 2004)

Analiza velikog broja izmerenih vrednosti ukazuje na složenost zavisnosti koncentracije radona od velikog broja parametara: godine izgradnje objekta, vrste i stanja podne konstrukcije, načina grejanja, uslova ventilacije, prisutnosti podruma ispod objekta i sl. O takvim podacima sa terena dobili smo informacije preko popunjenog upitnika koji je bio distribuiran učenicima zajedno sa radonskim detektorima. Na upitniku se nalazio i kratak podsetnik oko postavljanja i eksponiranja detektora u slučaju da su učenici i predmetni profesori zaboravili instrukcije date u toku obuke na Katedri za nuklearnu fiziku, na PMF-u u Novom Sadu.

Betonska ploča prekrivena litisonom U Cesta verhilatija izbog pušača U <u>6. Prostor i postovlje verhija verdaji</u> <u>postavlja kanistan:</u> Podrum U Prozorskog tipa ži Puna zemlja ži Split sistem U Severi se statem Severi se sta	Universitei u Novom Sedu Prirodno-matematički fakulta: Katedra za nuklearnu fiziku Katedra za Nova Sado TD Diradio Sado TD Bata za nače Sala D Selo S Priestako naselje D Priestako naselje D Stande podra kuća ži Priestako naselje D Sala D Selo S Priestako naselje D Stande podra kuća ži Stande podra kuća ži Sumena zgrada D Priestana za zači Stande podra kuća ži Priestava za zači Stande podra kuća ži Priestana zači podra D Stande podra kata zači Priestana zači podra D Priestana zači podra D Priestana zači podra D Priestana zači podra D	Marginary Deturnstrucza Korziśćense radowski bie koście. Pokłogać boćie se prostani si kom slučaju skinuti se boćie. Koncentracji radona si prostoriji mej se tako ši o se bočie postani na vu prostoriji u koji se tako ši o se bočie postani na vu prostoriji u koji se tako ši o se bočie postani na vu prostoriji u koji se tako se bočie postani na vu prostoriji u koji se tako se bočie postani na vu prostoriji u koji se tako se bočie postani na vu prostoriji u koji se tako se bočie postani na koji način ne predstavljanja vu kome se nalazi bočie treba koristiti u uobičajenom režimu grejanja i ventilacija vodi račinuka prostoriji o presiva kome postavljanja, se radomsku postavljanja detektor. Detektor ni na koji način ne predstavlja radjecionu bočie. Do zavšetku merenja detektor treba vrstiti predmetnom nastavniku u čolu. Datum postavljanja detektora: M.M. Su 2003. Korisnik: J.M.W. J.M.M. Zadučeni nastasvniku: Tomato J.M. Su 2003. Zadučeni nastasvniku: Tomato J.M.M. J.M.M.
	Betonska ploča pokrivena lindevnom u [−] Više od tri [−] Betonska ploča prekrivena litosom u [−] Česta ventilacij zbog pušača [−] <u>6. Prostor i spod prostorije u kolu sa</u> <u>postavlja kanistar.</u> Podrum [−] Puna zemlja gš. Split sistem [−] Drugi stan [−]	

Slika 4.26 Izgled popunjenog upitnika za korisnike radonskih detektora CR-39

Od posebnog značaja je bila analiza povišenih koncentracija aktivnosti, tj. onih vrednosti koje su iznad propisanih granica za novoizgrađene objekte, u našem slučaju 200 Bq/m³ (Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima, Sl.glasnik RS br.86/2011 od 18.11.2011.). Uobičajeno je da se procentualna zastupljenost tih vrednosti za neki region za sistematiku od 1000 merenja naziva radonski potencijal [93] i on za radonsku mapu Vojvodine po godinama iznosi 22%, 13% i 11%. Razlog tome je što su se prve godine mapiranja ciljano birali objekti za koje se pretpostavljalo da će imati povišenu koncentraciju aktivnosti radona (salaši i stare kuće sa zemljanim podovima, prizemne kuće i sl.), dok su se u narednim godinama detektori eksponirali i u novijim objektima, stambenim zgradama i sl. Još jedan od mogućih razloga su i vremeski uslovi, pošto je prve godine bila duga i hladna zima, dok su naredne dve godine zime bile kratke i blage. Izvršena je detaljna analiza među povišenim vrednostima i utvrđeno je da je približno podjednaka zastupljenost i starih i novih objekata (tabela 4.11), odnosno da su maksimalne vrednosti

koncentracije radona baš izmerene u novoizgrađenim objektima (gde razlog može biti loša gradnja u smislu izolacije i podnih spojeva). Takođe se pokazalo da je među povišenim koncentracijama radona dominatna zastupljenost prizemnih objekata bez podruma, dok način grejanja nije imao tako dominantan uticaj.

	2002/2003	2003/2004	2004/2005
Radonski potencijal	22%	13%	11%
stara gradnja	46%	45%	42%
nova gradnja	54%	55%	58%
podrum	9%	8%	13%
bez podruma	91%	94%	87%
betonska ploča	64%	66%	71%
zemlja / drveni pod	36%	34%	29%
prizemne kuće	94%	99%	99%
višespratne	6%	1%	1%
električno grejanje	35%	31%	-
čvrsti ogrev	38%	25%	44%
gas	21%	42%	18%

Tabela 4.11 Analiza radonskog potencijala za tri uzastopne serije od 1000 merenja koncentracije aktivnosti radona u stambenim objektima na području Vojvodine

Rezultate prve radonske mape je naša Laboratorija poslala Radioactivity Environmental Monitoring (REM) grupi, IES-JRC centru Evropske komisije (<u>http://radonmapping.jrc.it</u>) nakon čega je radonska mapa Vojvodine kao severnog regiona Srbije uključena u evropsku radonsku mapu (slika 4.27) koja je bila prilično neujednačena što se tiče metoda, načina prikazivanja podataka, broja merenja i sl. Trenutno je u toku izrada Evropske radonske mape po principu grid-a ili mreže, gde će se srednje vrednosti unositi u kvadrate 10 km x 10 km, na osnovu GPS koordinata lokacija. Trenutno su uspostavljeni kontakti, dobili smo neophodne programe za unos podataka i u toku je prikupljanje GPS koordinata lokacija. Pored radonske mape na osnovu koncentracija radona u vazduhu zatvorenih prostorija (tzv. indoor radon map) takođe postoji projekat izrade radonske mape na osnovu koncentracija radona koji emanira iz zemljišta (geogenic map) čime bi se prevazišli poblemi u graničnim oblastima usled različitosti u načinu izgradnje objekata, životnim navikama i sl.



Slika 4.27 Prvobitna radonska mapa Evrope iz 2005.godine sa implementiranom radonskom mapom Vojvodine [94]

GLAVA 5. Radonska ravnoteža

5.1 Ponašanje radonovih potomaka u vazduhu. Pripojena i nepripojena frakcija.

Radon ²²²Rn se raspada alfa raspadom na kratkoživeće potomke: ²¹⁸Po (α raspad, T_{1/2}=3.10 min), ²¹⁴Pb (β/γ raspad, T_{1/2}=26.8 min), ²¹⁴Bi (β/γ raspad, T_{1/2}=19.9 min) i ²¹⁴Po (α raspad, $T_{1/2}$ = 164 µs). Tokom alfa raspada uzmaknuti atom odbacuje elektrone i nastaju radonovi potomci koji su pozitivno naelektrisani slobodni joni ili neutralni atomi u vidu klastera malih dimenzija, 0.5 nm u dijametru približno. Oni rastu velikom brzinom do dimenzija od 0.5 – 5 nm kao rezultat pripajanja molekulima vode ili drugim molekulima u vazduhu u zavisnosti od trenutnih uslova u atmosferi i na taj način se obrazuju nepripojeni (slobodni) potomci radona u vidu ultrafinih aerosola ili klastera od svega nekoliko molekula koji lebde u vazduhu (dijametra reda veličine < 10 nm) [29,30]. Ovi klasteri difunduju kroz vazduh i stalnim međusobnim sudaranjem dolazi do njihovog spajanja i povećavanja, raspadanja ili taloženja na okolne površine (slika 5.1). Formiranje ovakvih klastera se odvija relativno brzo za razliku od njihovog uvećavanja – ostaju na nivou malih jona sve dok se ne pripoje ambijentalnim aerosolima i na taj način obrazuju velike jone. U zavisnosti od koncentracije jona u vazduhu i vlažnosti, nepripojeni radonovi potomci se delimično neutralizuju kroz rekombinaciju sa negativnim jonima ili se pripajaju česticama aerosola formirajući pripojene radonove potomke (dijametra reda veličine od 20 do 500 nm). Stepen pripajanja zavisi od koncentracije aerosola u vazduhu, npr. u zadimljenim i prašnjavim prostorijama, nepripojena frakcija je malo zastupljena, dok je u čistom okruženju sa filtracijom vazduhu, ova nepripojena frakcija više zastupljena. Uobičajeno je da se potomak ²¹⁸Po nalazi u nepripojenoj frakciji sa nižom koncentracijom nepripojenog ²¹⁴Pb (214 Pb/ 218 Po = 1/10) [1].

Zbog pojave taloženja aerosola na zidove i pod zatvorenih prostorija, zbog strujanja vazduha i ulaska svežeg vazduha, radioaktivna ravnoteža između potomaka i radona je samo delimično uspostavljena i izražava se preko faktora ravnoteže F koji predstavlja odnos ekvivalentnih ravnotežnih koncentracija aktivnosti potomaka i radona i čija vrednost se kreće između 0 i 1. Kada udišemo vazduh koji sadrži radon i njegove potomke, deo radonovih potomaka se taloži na zidove respiratornog trakta, gde se raspada i oslobađa energiju tkivu. Poznavanje ponašanja radonovih potomaka u atmosferi je vrlo značajno, jer je njihov doprinos zdravstvenom radijacionom riziku znatno veći nego od samog radona.



Slika 5.1 Ponašanje radonovih potomaka u vazduhu: a) formiranje nepripojene i pripojene frakcije; b) ponašanje nepripojene frakcije i taloženje na okolne površine [19]

Verovatnoća taloženja potomaka u ljudskim plućima je znatno veće za nepripojeneslobodne potomke nego za pripojene. Na taj način slobodna frakcija, iako je u normalnim uslovima ima znatno manje od pripojene (0,3 do 33% [96]) u većoj meri doprinosi dozi. Poznavanje slobodne frakcije radonovih potomaka f_{un} i faktora ravnoteže F zmeđu radona i potomaka predstavljaju veoma važne veličine za procenu doze koju stanovništvo primi od udisanja radona.

Pored pripajanja potomaka aerosolima, usled uzmaka jezgra pri emitovanju alfa čestice, postoji i obrnuti proces, odvajanje atoma od aerosola. Verovatnoća da dođe do odvajanja naziva se faktor uzmaka i ima visoke vrednosti $(0.81 - 0.83 \text{ za}^{218}\text{Pb} [95])$ što se objašnjava odnosom

energije uzmaknutog atoma (za²¹⁴Pb - 117 keV) i energije veze atoma u aerosolu koja je reda veličine eV. Do odvajanja ne dolazi u slučaju kada je dijametar aerosola veći od dometa atoma i kada je atom usmeren prema samom aerosolu za koji je pripojen.

Ispitivanje ponašanja radonovih potomaka i slobodnih i pripojenih se vrši primenom matematičkih modela (J-P Jacobi-Porstendorfer model sobe [97]) preko kvantitativnih veličinina, kao što su brzina pripajanja X, brzina taloženja q_f i brzina izmene vazduha ACH.

Brzina pripajanja X , brzina taloženja q_f i brzina izmene vazduha ACH se mogu izračunati ukoliko su poznate (izmerene) koncentracije aktivnosti radonovih potomaka na osnovu jednačina koje se dobijaju u modelu sobe za ravnotežno stanje [97]:

$$a_{j,f} = \frac{\lambda_{i-1} \left(a_{j-1,f} + R_{j-1} a_{j-1,a} \right)}{ACH + \lambda_j + q_f + X}$$

$$a_{j,a} = \frac{(ACHa_{j,o} + (1 - R_{j-1})\lambda_j a_{j-1,a} + Xa_{j-1,f})}{(ACH + \lambda_j + q_a)}$$
(5.1)

$$a_{0,i} = (Q_{Rn} + ACHa_{0,o})/(\lambda_0 + ACH)$$

za početne uslove $a_{0,i}=a_{0,i,f}$, $a_{0,i,a}=0$, $a_{j,o,f}=0$; a_j – koncentracija aktivnosti j-tog radonovog potomka [Bq/m³], λ_j – konstanta raspada j-tog radonovog potomka [h⁻¹], R_j – broj uzmaknutih atoma j-tog nuklida od čestica aerosola, prvi indeks j=0,1,2,3,4 označava nuklide ²²²Rn, ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Po, drugi indeks i,o – označava unutra/spolja (indoor/outdoor), treći indeks f,a – označava nepripojene/pripojene aktivnosti j-tog radonovog potomka, Q_{Rn} – sumu brzina ulazaka radona u kuću [Bq m⁻³ h⁻¹].

U realističnim uslovima, za ravnotežne uslove u jednoj prostoriji, brzina pripajanja X se može aproksimativno izračunati i samo na osnovu merenja nepripojene i pripojene koncentracije aktivnosti²¹⁸Po, na sledeći način:

$$X = \frac{a_{1ia}}{a_{1if}}\lambda_1 \tag{5.2}$$

gde su: a_{1ia} , a_{1if} koncentracije aktivnosti pripojenih i nepripojenih atoma ²¹⁸Po respektivno [Bq/m³] i λ_1 – konstanta raspada ²¹⁸Po [h⁻¹]. U slučaju merenja odgovarajuće raspodele aerosola po veličinima, brzina taloženja X se mođe odrediti kao:

$$X = \int_0^\infty \beta(d) Z(d) dd$$
(5.3)

gde su $\beta(d)$ – koeficijent pripajanja pripojenih radonovih potomaka aerosolima u funkciji dijametra čestica d [cm³h⁻¹], Z(d) - distribucija aerosola po veličinama [cm⁻³].

Koeficijent $\beta(d)$ se teorijski može proceniti na osnovu sledeće formule:

$$\beta(d) = \frac{2\pi D_0 d}{\frac{8D_0}{dv_0} + \frac{d}{2\delta_0}}$$
(5.4)

gde su D_0 – koeficijenat difuzije 6.8×10^{-2} cm²s⁻¹, v_0 – srednja termalna brzina 1.72×10^4 cm⁻¹, $\delta_0 = d/2 + s_0$ gde je $s_0 = 4.9 \times 10^{-6}$ cm srednja dužina slobodnog puta klastera sa nepripojenim potomcima.

Prema modelu brzina taloženja q_f nepripojenih radonovih potomaka se može aproksimirati pod realističnim uslovima (ACH<<X+ λ_1) na sledeći način:

$$q_{f} = \lambda_{1} \frac{a_{0}}{a_{1f}} - (\lambda_{1} + X)$$
(5.5)

Teorijskim razmatranjima [31] se pokazuje da dominantan uticaj na nepripojenu frakciju radonovih potomaka f_{un} ima brzina taloženja koja zavisi od koncentracije aerosola u vazduhu prostorije Z [cm⁻³]:

$$f_{un,Rn\approx} \frac{k_1 \lambda_1 + k_2 \lambda_2 R_1}{\overline{\beta}Z} = \frac{414}{Z[cm^{-2}]}$$
(5.6)

gde su k₁=0.105, k₂=0.516 i faktor uzmaka R₁=0.8- predstavlja deo odvojenih nuklida od površine čestica nakon alfa raspada ²¹⁸Po. $\bar{\beta}$ =1.4x10⁻⁶ cm³ s⁻¹ je prose;an kkoeficijent pripajanja za atmosferske aerosole dobijen na osnovu merenja.

Rezultati merenja na različtim mestima sa različitim izvorima aerosola su prikazani na slici 5.2. [98, 99] gde se može uočiti dobro slaganje sa vrednostima dobijenim teorijskim proračunima na osnovu formule (5.6) – na slici 5.2 puna linija za radonove potomke i isprekidana za toronove potomke.

U pojedinim radnim prostorijama usled različitih ljudskih aktivnosti i proizvodnih procesa sa sagorevanjem, npr je prisutna velika koncentracija aerosola $Z>4x10^4$ čestica/cm³ i stoga mali udeo nepripojene frakcije f_{un,Rn} koncentraciji ukune alfa energije ispod 0.01. Veće vrednosti (f_{un,Rn}>0.1) se očekuju u slabo ventiliranim prostorijama bez dodatnih izvora aerosola, u sobama sa prečišćivačima vazduha i loše ventiliranim podzemnim pećinama (Z<4x10³ čestica/cm³.

Za nepripojene toronove potomke u vazduhu zatvorenih prostorija se može aproksimirati sledeća relacija:

$$f_{un,Tn} = \frac{150}{Z \ [cm^{-3}]} \tag{5.7}$$

Za normalni kvalitet vazduha zatvorenih prostorija sa koncentracijom aerosola u opsegu $(5-15)x10^{-3}$ čestica/cm³ vrednosti za nepripojenu frakciju toronovih potomaka se kreću od 0.01 do 0.03. Slične vrednosti se dobijaju i merenjima u sobnom vazduhu [100].



Aerosol particle concentration, Z (cm⁻³)

Slika 5.2 Nepripojena frakcija radonovih $(f_{p,Rn})$ i toronovih $(f_{p,Tn})$ potomaka u funkciji koncentracije aerosola u vazduhu prostorije [31]

5.2 Faktor radonske ravnoteže u vazduhu

Faktor ravnoteže između radona i potomaka predstavlja veoma važnu veličinu za procenu doze koju stanovništvo primi od udisanja radona i neophodno ga je odrediti pri svakom monitoringu radona. Kao što je već opisano u poglavlju 1. faktor ravnoteže F se definiše se kao količnik ravnotežne ekvivalentne koncentracije radona Ceq $[Bq/m^3]$ i izmerene koncentracije radona u vazduhu C₀ $[Bq/m^3]$:

$$\mathbf{F} = \mathbf{Ceq}/\mathbf{C}_0 \tag{5.8}$$

Ravnotežna ekvivalentna koncentracija radona Ceq (engl. equilibrium equivalent concentration EEC) odnosi se na neravnotežnu smešu kratkoživećih radonovih potomaka u vazduhu i to je ona koncentracija radona u radioaktivnoj ravnoteži sa kratkoživećim potomcima koji imaju istu koncentraciju ukupne energije alfa čestica kao i neravnotežna smeša na koju se EEC odnosi. Skraćena oznaka za EEC je Ceq.
$$C_{eq} = 0.105 C_1 + 0.515 C_2 + 0.380 C_3 \quad (^{222} Rn \ niz) \tag{5.9}$$

$$C_{eq} = 0.913 C_1 + 0.087 C_2$$
 (²²⁰ Rn niz) (5.10)

gde su C₁, C₂ i C₃ koncentracije aktivnosti za potomke ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi iz niza radona respektivno i ²¹²Pb i ²¹²Bi (C₁ i C₂) iz niza torona.

Doza u ljudskim plućima uglavnom potiče od kratkoživećih radonovih potomaka, a ne od radona. To se objašnjava činjenicom da se radonovi potomci talože na zidove respiratornog trakta i zadržavaju u ljudskim plućima. Doza se proračunava na osnovu izmerene koncentracije aktivnosti radona u vazduhu pri čemu se pretpostavlja jedan konstantan faktor ravnoteže između radona i njegovih potomaka, za koji se najčešće uzima preporučena vrednost 0,4 [ICRPA]. Ovaj pristup računanju doze unosi veliku grešku, jer faktor ravnoteže zavisi od većeg broja parametara [2] i može biti značajno drugačiji od pretpostavljene konstantne vrednosti i zbog toga je potrebno razviti metodu merenja koncentracije potomaka kako bi se procenio faktor ravnoteže na osnovu formule (5.8).

Nedavne radonske studije za vazduh zatvorenih prostorija daju vrednosti faktora ravnoteže između radona i njegovih kratkoživećih potomaka u opsegu od 0.1 do 0.9, pri čemu je većina vrednosti u okviru 30% od preporučene tipične vrednosti 0.4 [101].

U literaturi se najčešće sreću metode za merenje faktora ravnoteže koje se zasnivaju na detekciji ukupne alfa aktivnosti i koje unose velike neodređenosti i greške [102]. Pri alfaspektrometriji značajan je problem samoapsorpcija alfa čestica u samom filtru, usled gubitka energija alfa čestica u filtru dobijaju se deformisani pikovi. U literaturi postoje poređenja pojedinih metoda određivanja radonovih potomaka, ali uglavnom svi autori se slažu da nijedna metoda nije dovoljno razvijena i precizna. Iako su najrasprostranjenije u primeni, metode koje se zasnivaju na detekciji ukupnog alfa zračenja imaju velike neodređenosti i unose velike greške. Postojanje toronovih potomaka u atmosferi dodatno komplikuje analizu rezultata merenja, jer dodatno doprinosi i alfa i beta aktivnosti.

U poslednje vreme u radonskim istraživanjima za merenja na terenu se koriste portabl uređaji (npr.Sarad-EQF30xx) koji mere koncentracije aktivnosti radonovih potomaka i direktno daju vrednost faktora ravnoteže [103]. Prema iskustvu samih korisnika ovih uređaja u ekstremnim uslovima (npr. u pećinama sa visokim sadržajem vlage u vazduhu) ovakva merenja nisu sasvim pouzdana i zahtevaju potvrdu i drugih egzaktnijih metoda. U nedavno publikovanom radu [104] naša laboratorija predlaže egzaktni metod merenja radonske ravnoteže u vazduhu koji se zasniva na gamaspektrometrijskom određivanju koncentracije radonovih potomaka određivanju na filter papiru uz simultano alfaspektrometrijsko merenje koncentracije aktivnosti radona u vazduhu.

U okviru metode su izvedene matematičke formule za izračunavanje početnih koncentracija potomaka ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb i²¹⁴Bi u vazduhu na početku usisavanja na osnovu detektovanog odbroja postradonskih gama linija sa uzorka filter papira. Ovakav model koji u sebi sadrži korekcije na radioaktivni raspad potomaka tokom usisavanja, hlađenja i merenja može naći primenu i u drugim nuklearnim analizama gde poluživot izvora ima isti red veličine kao raspoloživo vreme snimanja.

5.3 Metoda merenja faktora radonske ravnoteže u vazduhu.

Merenja faktora radonske ravnoteže su izvršena u prostoriji (6x5x3 m³) Laboratorije za nuklearnu fiziku, u prizemlju zgrade Departmana za fiziku, Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu. Koncentracija aktivnosti radona je merena alfa spektrometrom RAD-7, proizvođača Durridge Company, USA (slika 5.3) koji ima mogućnost kontinuiranog prikazivanja koncentracije radona i zbog toga je pogodan za ovakva simultana merenja. Podatak koji daje ovaj instrument je koncentracija aktivnosti radona u vazduhu jer prilikom uvlačenja vazduha pomoću automatske pumpe instrumenta u aktivnu zapreminu detektora, radonovi praškasti potomci se zaustavljaju na filteru neposredno pre ulaska u detektor. Za uzorkovanje aerosola korišćena je pumpa AIR Sampler - model DHFV-1SE, proizvođača F&J Speciality Products Inc., USA i filter papir sa staklenim vlaknima visoke efikasnosti prikupljanja od ε =98%. Brzina protoka pumpe u toku merenja iznosila je v = 0.0303 m³/s. U toku usisavanja radonovi kratkoživeći potomci pripojeni za aerosole u vazduhu hvataju se na nepokretni filter papir. Nakon prestanka usisavanja filter papir se približno homogeno pakuje u cilindričnu geometriju nakon čega je izvršeno devet sukcesivnih merenja u trajanju od po 1000 s, pri čemu je do početka prvog merenja proteklo 120 s



Slika 5.3. Eksperimentalna postavka: pumpa za filtriranje vazduha (levo) i alfa spektrometar RAD-7 (desno)

Datum usisavanja	11.08.2011.
Start	7:01
Stop	7:23
Ukupna zapremina vazduha	40.004 m^3
Start merenja	7:25
Vreme merenja t _m	1000 s
Vreme hlađenja t _H	120 s

m 1 1 e 1	m 1 · v1 ·	1 .	. 1	•
Tabela 5 L	Lehnicki	nodaci ii	toku	merenia
100010 5.1	Tenneki	poduoi u	ionu	morenju

Iako se alfaspektrometrom za detekciju radona ²²²Rn RAD7 može detektovati i toron ²²⁰Rn, ipak u ispitivanoj prostoriji na mestu uzorkovanja nije registrovano prisustvo torona. To je razumljivo jer za razliku od radona čiji je period poluraspada 3.824 dana i koji ima uniformnu raspodelu unutar prostorije, toron sa periodom poluraspada od 56 s nema uniformnu raspodelu u zatvorenoj prostoriji, nego eksponencijalno opada sa rastojanjem od svog izvora (zida, pukotine, šupljine u podnoj konstrukciji) [105]. Tako da ako je pod izvor torona u prostoriji i ako je koncentracija aktivnosti torona u neposrednoj blizini poda 200 Bq/m³, onda će koncentracija torona u središtu sobe (3x4x3 m³) biti 20 Bq/m³ (slika 5.4).



Slika 5.4 Promena koncentracije aktivnosti torona sa rastojanjem od izvornog zida [105]



Slika 5.5 Dvodimenzionalna distribucija torona u zatvorenoj prostoriji nakon 1,1 ks. Izvor torona je pod y=0 odakle toron difunduje u prostoriju [105]



Slika 5.6 Gama spektrometar tipa GX10021, oznake kartona B, relativne efikasnosti 100%

U ovom eksperimentu za određivanje gama aktivnosti filter papira kroz koji je usisavan vazduh korišćen je ultra nisko-fonski germanijumski detektor, proizvođača Canberra, tipa GX10021 koji ma prošireni merni opseg od 6 keV do 3 MeV i nalazi se u originalnoj zaštiti od olova debljine 15 cm (slika 5.6). Relativna efikasnost ovog detektora je 100% (ekvivalentno apsolutnoj efikasnosti 3"x 3" NaI(Tl) detektora na 1332 keV) što odgovara aktivnoj zapremini detektora od 380 cm³.

Zaštita detektora je napravljena od slojevito spojenog olova. Spoljašnih 5 inča (125 mm) je obično niskofonsko olovo, dok je unutrašnji sloj od oko 1 inč (25 mm) olovo sadržaja ²¹⁰Pb od oko 20 Bq/kg. Pasivna zaštita ima unutrašnji sloj koji zaustavlja X zrake iz K nivoa energije od 75-85 keV. Presvučeni materijali su nisko-fonski kalaj debljine 1 mm i bakar visoke čistoće debljine 1.5 mm. X-zraci koji potiču iz sloja kalaja (od 25 -28 keV) su takođe redukovani bakrom.

Zaštita je opremljena sa gasnim priključkom koji služi za uvođenje tečnog azota iz Dewar-a u unutrašnjost zaštite kako bi se snizio fon koji potiče od radona i radonovih potomaka. Ukupna masa zaštite iznosi 1633 kg. Redukcioni faktor fona za kompletni spektar (od 40 keV – 2768 keV) iznosi 238. Upravljanje sakupljanjem podataka i on-line praćenje spektara u formatu Canberra *.CNF vrši se pomoću programa Canberra Genie2000, verzija 2.1.

Za potrebe gamaspektrometrijskog merenja filtera bilo je potrebno preračunati efikasnost iz postojeće kalibracije za detektor B na osnovu odnosa efektivnih prostornih uglova pomoću programa Angle (ANGLE 2.0, Build version: 2.0.0.118, Copyright 1994-2002. by Slobodan Jovanovic and Aleksandar Dlabač). Korišćeni su sledeći podaci: geometrija – cilindrična kutija

prečnika 72 mm i visine 30 mm; gustina materijala – 0.047 g/cm³, materijal celuloza. Dobijena kriva efikasnosti prikazana je na slici 5.6.



Slika 5.7 Dobijena kriva efikasnosti za filter papir u jednoj cilindričnoj kutiji prečnika 72 mm i visine 30 mm

5.3.1 Matematički model za izračunavanje koncentracije aktivnosti radonovih potomaka u vazduhu na početku usisavanja

Kako bi se rezultat gama-spektrometrijskog merenja filter papira povezao sa koncentracijama radonovih potomaka u vazduhu prostorije ($C_1(^{218}Po)$, $C_2(^{214}Pb)$, $C_3(^{214}Bi)$)) neophodno je uzeti u obzir korekcije usled raspada kratkoživećih potomaka radona u toku usisavanja, hlađenja nakon prestanka propuštanja vazduha kroz filter i vremena merenja, pošto ova vremena nisu zanemarljiva u odnosu na kratke periode poluraspada otomaka ($^{218}Po - 3$ min, $^{214}Pb - 26.8$ min i $^{214}Bi - 19.9$ min).



b)

Slika 5.8. a) Šema raspada ²²²Rn i indeksirani potomci gama emiteri; b) Algoritam merenja koncentracije aktivnosti potomaka u vazduhu

U toku usisavanja radonovi kratkoživeći potomci pripojeni za aerosole u vazduhu hvataju se na nepokretni filter papir. Nakon vremena t_U od starta usisavanja na filter papiru se uhvatilo N₁, N₂ i N₃ atoma potomaka ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi, koji se mogu odrediti kao rešenja sledećih diferencijalnih jednačina koje predstavljaju promenu broja atoma potomaka u toku usisavanja, za početni uslov N₁(0)=0, N₂(0)=0, N₃(0)=0, tj. da na početku usisavanja nema radonovih potomaka na filtru:

$$\frac{dN_1}{dt_U} = C_1 v \varepsilon - \lambda_1 N_1$$

$$\frac{dN_2}{dt_U} = C_2 v \varepsilon + \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

$$\frac{dN_3}{dt_U} = C_3 v \varepsilon + \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3$$
(5.11)

Rešenje ovog sistema diferencijalnih jednačina je izvršeno u programskom paketu *Matematica* za zadate početne uslove i odgovarajuće vrednosti konstanti raspada ($\lambda_1=0.003787 \sigma^{-1}$, $\lambda_2=0.000431 \sigma^{-1}$, $\lambda_3=0.00058 \sigma^{-1}$), brzine protoka usisavanja (v=0.0303 m³/s), efikasnosti filter papira ($\epsilon=0.98$) i vremena usisavanja (t_U=1320s).

Nakon prestanka usisavanja broj atoma potomaka radona na filter papiru se tokom hlađenja i merenja menja u skladu sa jednačinama:

$$\frac{dN_1'}{dt} = -\lambda_1 N_1'$$

$$\frac{dN_2'}{dt} = \lambda_1 N_1' - \lambda_2 N_2'$$

$$\frac{dN_3'}{dt} = \lambda_2 N_2' - \lambda_3 N_3'$$
(5.12)

Početni uslovi za ovaj sistem jednačina dobijeni su kao rezultat rešavanja prvog sistema diferencijalnih jednačina (5.11) i iznose:

$$N_{1}'(0) = 7.78814 C_{1}$$

$$N_{2}'(0) = -78.4011 (-0.31813C_{1}-0.381261 C_{2})$$

$$N_{3}'(0) = -1.90951x10^{9} (-2.72364C_{1}-3.79308 x10^{-9}C_{2}-1.43426x10^{-8}C_{3}).$$
(5.13)

Rešavanjem sistema jednačina (5.12) dobijaju se odgovarajuća rešenja koja predstavljaju promenu broja jezgara radonovih potomaka na filter papiru $N'_1(t)$, $N'_2(t)$, $N'_3(t)$.

Broj raspadnutih jezgara ²¹⁴Pb, odnosno ²¹⁴Bi u toku vremena merenja može se povezati sa gamaspektrometrijskim podacima uzorka filter papira na osnovu sledeće relacije:

$$\frac{N_d}{\varepsilon_d p_{\gamma}} = N_r \tag{5.14}$$

gde je N_r broj raspadnutih jezgara u toku vremena merenja t_M , N_d ukupan broj detektovanih događaja pod odgovarajućim fotovrhom u toku vremena merenja, ϵ_d fotopik efikasnost detekcije i p_{γ} verovatnoća emisija gama kvanta. Ovde se broj raspadnutih jezgara može izraziti na sledeći način:

$$N_r = N'(t = t_H) - N'(t = t_H + t_M)$$
 (5.15)

Pri čemu prvi član ove razlike je broj neraspadnutih jezgara nakon vremena hlađenja, a drugi član je broj neraspadnutih jezgara nakon vremena hlađenja i merenja.

5.3.2 Rezultati merenja

U eksperimentu su dobijene sledeće vrednosti intenziteta gama linija 351.9 keV (²¹⁴Pb) i 609.3 keV (²¹⁴Bi) koje su date u Tabeli 5.2:



Slika 5.9 Izgled spektra BSOFPMF1 sa obeleženim linijama od 351.9 keV i 609.3 keV

t _H [s]	t _M [s]	t _H +t _M [s]	Oznaka spektra	$ \begin{array}{c} N_{d} \ (351.9 \ keV) \\ \epsilon_{d} = 0.0425; \\ p_{\gamma} = 0.371 \end{array} $	$N_{d} (609.3 \text{ keV})$ ϵ_{d} =0.0264; p_{γ} =0.461
120	1000	1120	BSOFPMF1	3108	2962
1120	1000	2120	BSOFPMF2	2041	2526
2120	1000	3120	BSOFPMF3	1315	1906
3120	1000	4120	BSOFPMF4	865	1374
4120	1000	5120	BSOFPMF5	546	1003
5120	1000	6120	BSOFPMF6	367	707
6120	1000	7120	BSOFPMF7	230	456
7120	1000	8120	BSOFPMF8	136	283
8120	1000	9120	BSOFPMF9	89	238
9120	1000	10120	BSOFPMF10	43	123

Tabela 5.2 Intenziteti gama linija od 351.9 keV-a i 609.3 keV-a u seriji ponovljenih merenja od 1000 s

Na osnovu relativnog opadanja odbroja u linijama 351.9 keV i 609.3 keV može se pratiti ponašanje radonovih kratkoživećih potomaka ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi. Posle izvesnog vremena uspostavlja se prelazna ravnoteža u ovom delu niza kratkoživećih predaka i potomaka i oni se raspadaju sa novim periodom poluraspada koji se može proceniti ako se nacrta zavisnost $ln(N/N_0)$ od vremena t, gde je N odbroj u datoj liniji nakon vremena t, a N_0 početni odbroj.

Za olovo ²¹⁴Pb, perioda poluraspada 26.8 min:

$$\begin{split} \lambda_1 &= 0.0003099 \text{ s}^{-1} \\ (T_{1/2})_1 &= & \ln 2/0.003099 \text{ s}^{-1} &= 2236 \text{ s} \\ \text{novi period poluraspada} : & (T_{1/2})_1 &= 37 \text{ min} \end{split}$$



Slika 5.10 Zavisnost $ln(N/N_0)$ od vremena t, gde je N odbroj u datoj liniji nakon vremena t, a N_0 početni odbroj za olovo ²¹⁴Pb

Za bizmut ²¹⁴Bi, perioda poluraspada 19,8 min:

 $\lambda_1 = 0.0004373 \text{ s}^{-1}$ (T_{1/2})₁=ln2/0.0004373 s⁻¹= 1584 s novi period poluraspada: (T_{1/2})₁= 26 min



Slika 5.11 Zavisnost $ln(N/N_0)$ od vremena t, gde je N odbroj u datoj liniji nakon vremena t, a N_0 početni odbroj za bizmut ²¹⁴Bi

Primenjujući algoritam razvijenog matematičkog modela za ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi dobijaju se sledeće relacije:

$$N_r (^{214}Pb) = 5.76 C_1 + 9.93 C_2$$
, $za t_H = 120 s i t_M = 1000 s$
 $N_r (^{214}Pb) = 7.17 C_1 + 6.46 C_2$, $za t_H = 1120 s i t_M = 1000 s$ (5.16)

 $N_r (^{214}Bi)=-5.23 C_1-3.77 C_2+11.24C_3$, za t_H=120 s i t_M=1000 s

Postupak rešavanja u programskom paketu Matematica je odštampan u Aneksu II ove glave. Koristeći podatke iz Tabele 5.2 i sistem linearnih jednačina (5.16) izračunate su početne koncentracije radonovih potomaka: $C_1=356 \text{ m}^{-3}$, $C_2=19785 \text{ m}^{-3}$ i $C_3=28446 \text{ m}^{-3}$ što odgovara sledećim koncentracijama aktivnosti radonovih potomaka u vazduhu:

A₁= $\lambda_1 C_1$ =1.4(5) Bq/m³;

$$A_2 = \lambda_2 C_2 = 8.50(15) \text{ Bq/m}^3 \text{ i}$$

$$A_3 = \lambda_3 C_3 = 16.50(15) \text{ Bq/m}^3$$

Merne nesigurnosti za A_1 , A_2 i A_3 su procenjene samo na osnovu statističke merne nesigurnosti površine fotovrhova.

Imajući u vidu da je istovremeno izmerena koncentracija aktivnosti radona na mestu usisavanja vazduha kroz filter papir iznosila 20 ± 4 Bq/m³, procenjeni faktor ravnoteže radonovih potomaka i radona prema relaciji (5.8) je **0.54(11)** što je u dobrom slaganju sa preporučenom vrednošću od 0.4.

Velika razlika u dobijenim koncentracijama radonovih potomaka zahteva analizu njihovog kompleksnog ponašanja u atmosferi, u smislu pripajanja aerosolima, taloženja i razelektrisavanja. Ovi procesi su i najizraženiji kod prvog potomka ²¹⁸Po što pokazuje i najveća merna nesigurnost za koncentraciju aktivnosti ovog potomka jer u najvećoj meri koncentracija aktivnosti ²¹⁸Po zavisi od odbroja u gama-linijama olova ²¹⁴Pb i bizmuta ²¹⁴Bi.

Ovaj matematički model može da se koristi kao jednostavan egzaktan metod merenja koncentracije radonovih i toronovih potomaka u vazduhu zatvorenih prostorija i metoda određivanja faktora radonske i toronske ravnoteže korišćenjem gama-spektrometrijske metode. Sličan formalizam u slučaju merenja beta aktivnosti filtera u tri vremenska intervala se već koristi u praksi i naziva se Kuznetz-ova proba [106].

6. Zaključak

Ispitivanje gasovitih produkata u nizovima uranijuma i torijuma predstavlja važan preduslov za gama-spektrometrijska ispitivanja, a za autora ove teze oblast kojom se najviše bavi u svom naučno-istraživačkom radu. Kroz prethodna poglavlja je sagledana ova problematika sa više aspekata, počev od teorijskog uvoda o radioaktivnoj ravnoteži u nizovima uranijuma i torijuma, preko analize prednosti i nedostataka gama-spektrometrijske metode i rezultata dosadašnjih eksperimentalnih merenja do predlaganja i razvijanja novih metodologija koje bi dovele do preciznijih procena radijacionog rizika od radona i torona.

Istraživanja vršena poslednje decenije pokazuju da u normalnim uslovima preko 70% ukupne godišnje doze koju prima stanovništvo potiče od prirodnih izvora jonizujućih zračenja, pri čemu je 40% uslovljeno udisanjem prirodnog radioaktivnog gasa, radona ²²²Rn, odnosno njegovih potomaka. Brzo, jednostavno i precizno određivanje sadržaja uranijuma ²³⁸U u uzorcima iz životne sredine, mogućnost praćenja migracije i varijacije ovog radionuklida u zemljištu, kao i detekcija kontaminacije osiromašenog uranijuma predstavlja imperative za laboratorije koje se bave ispitivanjem radioaktivnosti.

Obrazložena je mogućnost promptnog gama-spektrometrijskog određivanja koncentracije aktivnosti uranijuma²³⁸U u uzorcima iz životne sredine pomoću niskoenergetskih linija potomka ²³⁴Th uz formulisanje metodologije merenja. Na osnovu bogate sistematike merenja za uzorke poljoprivrednog zemljišta sa područja Vojvodine i ispitivanja narušene ravnoteže između uranijuma²³⁸U i radijuma²²⁶Ra, predložena je precizna metoda za detekciju malih i srednjih koncentracija aktivnosti osiromašenog uranijuma u kontaminiranom zemljištu. Opisani metod određivanja koncentracija aktivnosti osiromašenog uranijuma testiran je na brojnim uzorcima koji su tokom i nakon NATO-agresije ispitani u Laboratoriji za nuklearnu fiziku, Departmana za fiziku, Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu. Opisana niskofonska gamaspektrometrijska metoda za određivanje sadržaja uranijuma u uzorcima iz životne sredine je primenjena u monitoringu radioaktivnosti poljoprivrednog i nepoljoprivrednog zemljišta na području opštine Novi Sad u periodu od 2006–2012. godine i u projektu praćenja radioaktivnosti poljoprivrednog zemljišta na 50 lokacija na području Vojvodine u toku 2001. i nakon 10 godina na istim lokacijama u toku 2011.godine. Ovim opsežnim studijama se došlo do interesantnih rezultata koja zahtevaju dalja multidisciplinarna istraživanja. Prikazana je i mogućnost praćenja kontaminacije zemljišta upotrebom fosfatnih đubriva, kao i procena transfer faktora detektovanih radionuklida iz zemljišta u biljke. Dobra korelacija između prirodnih radioaktivnih elemenata se može objasniti kako geološkom prošlošću zemljišta, tako i činjenicom da ljudskim aktivnostima nije došlo do povećanja koncentracije jednog od njih na bilo kojoj od lokacija na kojima je zemljište uzorkovano.

Komplikovano ponašanje gasovitog produkta uranijuma radona i njegovih kratkoživećih potomaka predstavlja veliki problem za niskofonske podzemne laboratorije i radijacioni rizik izloženog stanovništva. Zbog pojave taloženja aerosola na zidove i pod zatvorenih prostorija, zbog strujanja vazduha i ulaska svežeg vazduha, radioaktivna ravnoteža između potomaka i radona je samo delimično uspostavljena i izražava se preko faktora ravnoteže F koji predstavlja odnos ekvivalentnih ravnotežnih koncentracija aktivnosti potomaka i radona i čija vrednost se kreće između 0 i 1.

Korišćenje tipične vrednosti 0.4 za faktor ravnoteže između radona i njegovih potomaka u vazduhu, preporučene od međunarodnih organizacija UNSCEAR (Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation) i ICRP (International Commission on Radiological Protection) za procenu ekvivalentne doze za pluća od udisanja radona i njegovih potomaka dovodi do ozbiljne greške i neophodno je za svaki konkretan slučaj proračunati ili izmeriti faktor radonske ravnoteže F. Postojeće metode i instrumenti nisu baš sasvim pouzdani ili unose velike neodređenosti. Naša Laboratorija predlaže egzaktnu metodu za procenu F na osnovu gamaspektrometrijskih merenja filter papira nakon usisavanja vazduha iz prostorije uz simultano određivanje koncentracije aktivnosti radona u vazduhu.

U okviru ove teze dati su preliminarni rezultati određivanja radonske ravnoteže gama spektrometrijskim merenjem radonovih potomaka - gama emitera prikupljenih na filter papiru. Određene su koncentracije aktivnosti potomaka radona u vazduhu i na osnovu simultano izmerene koncentracije aktivnosti radona u vazduhu date zatvorene prostorije izvršena je procena faktora radonske ravnoteže. Dobijena vrednost od 0.54 (11) je u dobrom slaganju sa literaturom i tipičnom vrednošću od 0.4. Ovakav matematički model se može adekvatno primeniti na toron i njegove potomke. U konkretnom eksperimentu nije registrovano prisustvo gasa torona u ispitivanoj prostoriji korišćenjem detektora RAD7 i toron protokola za merenje koncentracije aktivnosti torona, pa primena modela na toron i njegove potomke nije realizovana. U narednim istraživanjima zbog obrazloženih problema sa merenjem torona ideja je da se primene direktni senzori za toronove potomke DTPS (Direct Thoron Progeny Sensor) kako bi se procenila ravnotežna koncentracija torona EETC (Equilibrium Equivalent Thoron Concentration).

Velika razlika u dobijenim koncentracijama radonovih potomaka zahteva analizu njihovog kompleksnog ponašanja u atmosferi, u smislu pripajanja aerosolima, taloženja i razelektrisavanja. Ovi procesi su i najizraženiji kod prvog potomka ²¹⁸Po što pokazuje i najveća merna nesigurnost za koncentraciju aktivnosti ovog potomka jer u najvećoj meri koncentracija aktivnosti ²¹⁸Po zavisi od odbroja u gama-linijama olova ²¹⁴Pb i bizmuta ²¹⁴Bi.

Detaljna analiza i usavršavanje ovog metoda se planira u budućim istraživanjima na velikom broju merenja kako bi mogla da se izvrši optimalizacija vremena usisavanja kroz filter, kao i vremena hlađenja i vremena merenja. Problem saturacije potomaka na filter papiru će takođe biti razmatran u budućim istraživanjima.

Literatura:

[1] UNSCEAR (2000) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes

[2] I.Bikit, Lj.Čonkić: Jonizujuće zračenje u prirodi, Institut za fiziku, PMF Novi Sad

[3] Adam Dangić: Geohemijski procesi u prirodi i radionuklidi, Monografija Jonizujuća zračenja iz prirode, Beograd 1995, ISBN 86-80055-75-1

[4] Vukotić P.: Prirodni mineralni resursi kao potencijalni nosioci povećanih koncentracija radioaktivnih elemenata, Univerzitet "Veljko Vlahović", Titograd 1984. (interna publikacija)

[5] UNSCEAR 1977 REPORT Sources of Ionizing Radiation United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation 1977 report to the General Assembly, with annexes, Anex B Natural sources of radiation

[6] Andreeva O.S., Badjin V.I., Kornilov A.N.: Natural and depleted uranium. Atomizdat, Moscow 1979 (in Russian).

[7] Kikoina, I.K., 1976. Tables of physical constants. Atomizdat, Moscow (in Russian).

[8] Regional Training Course on Public and Environmental Exposure Models and Related Radiation Monitoring, IAEA Technical Cooperation Project RER/9/117, Tirana 29 October – 2 November 2012, predavanje Environmental Monitoring (EM), Dr. Christian Kunze AMEC Earth&Environmental UK Ltd.

[9] Bikit Istvan, Mrdja Dusan, Todorovic Natasa, Nikolov Jovana, Krmar Miodrag, Veskovic Miroslav, Slivka Jaroslav, Hansman Jan, Forkapic Sofija, Jovancevic Nikola: Airborne radioiodine in northern Serbia from Fukushima, JOURNAL OF ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY, (2012), vol. 114 br., str. 89-93

[10] Argonne National Laboratory, EVS – Human Health Fact Sheet, August 2005, http://www.ead.anl.gov/pub/doc/natural-decay-series.pdf

[11] Lazar Marinkov: Nuklearna fizika, Prirodno-matematički fakultet u Novom Sadu

[12] IAEA Safety Guide No.RS-G.1.8

[13] IAEA Safety Reports Series 19 - Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2001

[14] Zakon o zaštiti od jonizujućih zračenja i o nuklearnoj sigurnosti (Službeni glasnik Republike Srbije br. 36/2009)

[15] Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima (Službeni glasnik RS br. 86/2011.)

[16] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing Radiation: Sources and Effects, UNSCEAR 2008 REPORT, VOLUME II, United Nations, New York (2008).

[17] Regional Training Course on Public and Environmental Exposure Models and Related Radiation Monitoring, IAEA Technical Cooperation Project RER/9/117, Tirana 29 October – 2 November 2012, predavanje ERICA

[18] Simona Jurkovič, Joško Osredkar, Janja Marc: Molekularni utjecaj glutation-peroksidaza u antioksidacijskim procesima. Biochemia Medica 2008;18(2):162-74.

[19] C.Richard Cotherh, James E, Smith Jr.:Environmental Radon, Environmental Science Research Volume 35, 1987, Plenum Press New York

[20] ICRP (1993) Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Protection against Radon-222 at Home and at Work. ICRP Publication 65, Pergamon, Oxford

[21] Pravilnik o granicama kontaminacije lica, radne i životne sredine (Sl.glasnik RS 38/2011)
 [22] UNSCEAR (1993) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic

Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with scientific annexes

[23] Birchall, A. and A.C. James. Uncertainty analysis of the effective dose per unit exposure from radon progeny and implications for ICRP risk-weighting factors. Radiat. Prot. Dosim. 53: 133-140 (1994).

[24] Hopke, P., B. Jensen, C.S. Li et al. Assessment of the exposure to and dose from radon decay products in normally occupied homes. Environ. Sci. Technol. 29:1359-1364 (1995).

[25] J.W.Marsh and A.Birchall: Sensitivity Analysis of the Weighted Equivalent Lung Dose per Unit Exposure from Radon Progeny, Radiation Protection Dosimetry, Vol.87, No.3, pp.167-178 (2000)

[26] Janja Vaupotič: Comparison of various methods of estimating radon dose at underground workplaces in wineries, Radiat Environ Biophys (2008) 47: pp.527-534

[27] K.H.Becker, A.Reineking, H.G.Scheibel, J.Porstendorfer: Radon Daughter Activity Size Distributions, Radiation Protection Dosimetry, Vol.7, No 1-4, pp. 147-150 (1984)

[28] Vlad C.Tomulescu, Raluca Gheorghe, Olga Iacob: Influence of Ventilation and Aerosol Size on the Annual Effective Dose Received by Reference Workers in Uranium Mines, The Journal of Preventive Medicine 2002; 10 (2): 46-51

[29] Constantin Papastefanou: Radon Decay Product Aerosols in Ambient Air, Aerosol and Air Quality Research, 9: 385-393, 2009

[30] Janja Vaupotič and Ivan Kobal: The Importance of Nanosize Aerosols of Radon Decay Products in Radon Dosimetry, Croatica Chemica Acta 80 (3-4) 565-573 (2007)

[31] J.Porstendorfer: Physical Parameters and Dose Factors of the Radon and Thoron Decay Products, Radiation Protection Dosimetry, Vol.94, No.4, pp. 365-373 (2001)

[32] International Commission on Radiological Protection. Human respiratory tract model for radiological protection. Annals of the ICRP 24(1-3). ICRP Publication 66. Pergamon Press, Oxford, 1994.

[33] Snežana Pavlović, Dragoslav Nikezić: Nivoi izloženosti jonizujućem zračenju iz prirode i metode za proračun doza, Monografija Jonizujuća zračenja iz prirode, JDZZ, Beograd 1995, str.335-359

[34] ICRP (1994) Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Protection Against Radon-222 at Home and at Work, ICRP Publication 65. Pergamon, Oxford

[35] Approved Procedure for Dose Assessment Guideline RSG05, Department of Industry and Resources, Governmet of Western Australia, MOSHAB ZMR001DU/R, December 1997, Version 1.0

[36] K.Debertin and R.G.Helmer: Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors, North Holland 1988

[37] Gordon Gilmore, John D.Hemingway, Practical gamma ray spectrometry, second edition, John Wiley&Sons Ltd, 1995

[38] International Atomic Energy Agency, Measurement of Radionuclides in Food and Environment, Techn. Rep. Ser. No. 295, IAEA, Vienna, 1989

[39] Multi-Agency Radiological Laboratory Analytical Protocols Manual MARLAP Volume II (EPA 402-B-04-001B)

[40] Nafaa Reguigui: Gamma Ray Spectrometry – Practical Information -

http://www.cnstn.rnrt.tn/afra-ict/NAT/gamma/html/Gamma%20Spec%20V1.pdf

[41] William R. Leo: Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-To Approach, Springer-Verlag, Second Revised Edition, 1994

[42] Canberra User's Manual – Model 2026 Spectroscopy Amplifier

[43] J.Slivka, I.Bikit, M.Vesković, Lj.Čonkić: Gama spektrometrija, specijalne metode i primene, Monografija, Univerzitet u Novom Sadu, 2000

[44] Slivka J., Bikit I., Vesković M., Krmar M., Todorović N., Mrđa D., Forkapić S. : Evaluation of Efficiency Calibration Methods of Semiconductor Gamma Spectrometers , Journal of research in Physics, 2007, Vol. 31, Broj 1, str. 19-30

[45] Moens, L., De Donder, J., Lin, X., De Corte, F., De Wispelaere, A., Simonits, A., Hoste, J.: Calculation of the absolute peakefficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. Nucl. Instrum. Methods 187 (1981) 451–472.

[46] Uverenje o etaloniranju za radioaktivni izvor 152Eu, STANDARD SOURCE MULTIGAMMA 152Eu, Proizvođač: L.E.A. FRAMATOME ANP, CERCA, Francuska, Model: EU152EGMA20, serijski br. 22107 od 20.01.2005.

[47] Lederer C.M. and Shirley V.S. : Table of Isotopes (seventh edition), John Wiley and Sons, New York, 1978

[48] Dušan Mrđa, Komparativna studija pasivnih zaštita za gama spektrometre, Magistarska teza

[49] P.Mortreau, R.Berndt: Handbook of Gamma Spectrometry Methods for Non-destructive Assay of Nuclear Materials, EUR19822EN, Joint Research Centre, Ispra

[50] I. Bikit, J. Slivka, Gama-spektrometrijsko odreĐivanje uranijuma, Uticaj upotrebe fosfornih dubriva na kontaminaciju uranom, Naučni skupovi Srpske akademije nauka i umetnosti LXXII-5 31 (1993).

[51] S. Manojlović, I. Bikit, J. Slivka, M. Vesković, Lj. Čonkić, D. Dozet, M. Krmar, G. Novak, Da li Đubriva koja sadrŽe fosfor zagađuju zemljiŠta radionuklidima iz uranovog niza?, Zbornik radova Instituta za ratarstvo i povrtarstvo Poljoprivrednog fakulteta u Novom Sadu, 16, 11 (1989).

[52] S. Bjornholm, O.B. Nielsen: Nucl. Phys., 42 (1963), p. 642

[53] A.H. Wapstra: Nucl. Phys., A97 (1967), p. 641

[54] H.L. Scott, K.W. Marlow: Nucl. Instr. and Meth. A, 286 (1990), p. 549

[55] K. Siemon, R.A. Esterlund, J. van Aarle, M. Knaack: Appl. Rad. Isotopes, 43 (1992), p. 873

[56] K. Siemon, R.A. Esterlund, J. Van Aarle, M. Knaack, W. Westmeier, P. Patzelt:

Anewmeasurement of the gamma-ray intensities of 234mPa accompanying the decay of 238U, Applied Radiation and Isotopes 43(7), 1992, pp 873–880

[57] A.C. Nzuruba: Evaluation of absolutegamma ray emissionprobabilities in the decay of 234mPa, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 424 (2–3), 1999, pp 425–443

[58] Bikit I., Mrđa D., Todorović N., Varga E., Forkapić S., Vesković M., Slivka J., Čonkić Li. : Possibility of prompt U-238 activity concentration determination by gamma-ray

spectroscopy, JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS PART 1-REGULAR PAPERS SHORT NOTES & R EVIEW PAPERS, 2005, Vol. 44, Broj 1A, str. 377-379

[59] James T.Waples, Kent A.Orlandini, Kim M.Weckerly, David N.Edgington, J.Val Klump: Measuring low concentrations of 234Th in water and sediment, Marine Chemistry 80 (2003) 265-281

[60] P.Benes, J.John and F.Sebesta: What do Radioactive Equilibria Say about the Contamination of Freshwater Sediments in Bohemia with Natural Radionuclides? Radiochimica Acta 78, 163-165 (1997)

[61] Bikit I., Slivka J., Mrđa D., Todorović N., Forkapić S., Varga E., Vesković M., Čonkić Lj. : SIMPLE METHOD FOR DEPLETED URANIUM DETERMINATION , Jpn. J. Appl. Phys., 2003, Vol. 42, str. 5269-5273

[62] Z.S.Žunić, D.Jkarangelos, M.J.Anagnostakis, E.P.Hinis and S.E.Simopoulos: Abst. NRE-VII, Rhodes, Greece, 2002, p.202

[63] Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – TRS-DRAFT document 2009

[64] Brai, M., Basile, S., Bellia, S., Hauser, S., Puccio, P., Rizzo, S., Bartolotta, A., Licciardello, A., 2002. Environmental radioactivity at Stromboli (Aeolian Islands). Applied Radiation and Isotopes 57, 99–107.

[65] McAuley, I.R., Moran, C., 1983. Natural radioactivity in soil in Republic of Ireland. Radiation Protection Dosimetry 24, 47–49.

[66] Selvasekarapandian, S., Sivakumar, R., Manikandan, N.M., Meenakshisundaram, V., Raghunath, V.M., Gajendran, V., 2000. Natural radionuclide distribution in soils of Gudlaore, India. Applied Radiation and Isotopes 52, 299–306.

[67] Sroor, A., El-Bahi, S.M., Ahmed, F., Abdel-Haleem, A.S., 2001. Natural radioactivity and radon exhalation rate of soil in southern Egypt. Applied Radiation and Isotopes 55, 873–879.
[68] Chen, C.-J., Weng, P.-S., Chu, T.-C., 1993. Evaluation of natural radiation in houses built with black schist. Health Physics 64 (1), 74–78.

[69] Karahan, G., Bayulken, A., 2000. Assessment of gamma dose rates around Istanbul (Turkey). Journal of Environmental Radioactivity 47, 213–221.

[70] Bikit I., Slivka J., Čonkić Lj., Krmar M., Vesković M., Todorović N., Varga E., Forkapić S., Mrđa D. : Radioactivity of the soil in Vojvodina (northern province of Serbia and

Montenegro), Journal of Environmental radioactivity, 2005, Vol. 78, Broj 1, str. 11-19 [71] Tošić, R., Dragićević, S.S., Bikit, I.S., Forkapić, S., Mrdja, D., Todorović, N., Blagojević, B.

Estimating the soil erosion and deposition rate using 137Cs tracer method in the catchment of drenova reservoir (B&H) Nuclear Technology and Radiation Protection 27 (3), (2012) pp. 247-253

[72] Tošić, R., Todorović, D.J., Dragićević, S.S., Bikit, I.S., Forkapić, S., Blagojević, B.: Radioactivity and measurements of sediment deposition rate of the drenova reservoir (B&H), Nuclear Technology and Radiation Protection, Volume 27, Issue 1, 2012, pp 52-56

[73] EPA 520/5-87-005 – 1987 EERF Standard Operating Procedures for Rn-222 Measurement Using Charcoal Canisters

[74] RAD7 Instrument Manual – R7MANV6.1.pdf

[75] EPA 402-R-92-004- Indoor radon and Radon Decay Product Measurement Devices Protocols

[76] Durridge Radon Instrumentation: Technical Note: Thoron Calibration-

http://www.durridge.com/featured_articles_thoron_calibration.shtml

[77] S.A.Durrani and R.Ilić, Radon Measurements by Etched Track Detectors, Applications in Radiation Protection, Earth Sciences and the Environment, World Scientific Publishing, Singapore, 1997.

[78] T.Šutej, R.Ilić, M.Najžer, Nucl.Tracks Radiat. Meas. 15 (1988) p.547

[79] R.L.Fleisher et al., Health Phys. 39 (1980), p.957

[80] RADOSYS User Manual: www.radosys.com

[80] M. Vesković, I. Bikit, M. Jevtić, Lj. Čonkić, N. Žikić, S. Ćurčić: Exposures to Radon of Novi Sad Population and Health Risk Evaluation Proc. Of The Fifth International Symposium and Exhibition on Environmental Contamination in Central and Eastern Europe, Prague (2000)

[81] S. Ćurčić, I. Bikit, J. Slivka, M. Vesković, Lj. Čonkić, E. Varga: RADIO

ECOLOGICAL PROBLEMS IN HOME BUILDING IN THE CITY OF NOVI SAD, Proc. Of The Sixth International Symposium and Exhibition on Environmental Contamination in Central and Eastern Europe, Prague (2003)

[82] M. Vesković, M. Jevtić, I. Bikit, Lj. Čonkić, J. Slivka, M. Krmar, S. Ćurčić, E. Varga RADON ACITIVITY CONCENTRATION MEASUREMENTS AND HEALTH RISK ASSESMENT IN NOVI SAD Proc. of XXI Symp. JDZZ (2001) 131-135

[83] M. Vesković, M. Jevtić, M. Krmar, S. Ćurčić. E. Varga, INDOOR RADON ACTIVITY CONCETRATION IN NOVI SAD, Eco. Conf. (2001) N. Sad, 77-82

[84] S. Ćurčić, I. Bikit, Lj. Čonkić, M. Vesković, J. Slivka, E. Varga, N. Žikić-Todorović, D. Mrđa, FIRST RADON MAP OF VOJVODINA Proc. Of The XXII Simposium of JDZZ Petrovac (2003) 95-98 (in Serbian)

[85] Bikit I., Slivka J., Vesković M., Čonkić Lj., Z.Jovanovic, Žikić-Todorović N., Varga E., Ćurčić S., Mrđa D. RADON EMANATION FROM SOIL Proc of The XXXI Conf. on Air Protection; Belgrade (2003); 101 - 106

[86] Ćurčić Š.,Bikit I.,Slivka J.,Čonkić Lj.,Vesković M., Varga E., Žikić-Todorović N., Mrđa D.: FIRST RADON MAP OF VOJVODINA, Proc of The XXII Simp. Of Jug. Rad. Prot. A. (2003), 195 – 198

[87] S.Forkapić, I.Bikit, Lj.Čonkić, M.Vesković, J.Slivka, M.Krmar, Nataša Žikić-Todorović, Ester Varga, Dušan Mrđa METODE MERENJA RADONA Zbornik radova nacionalne konferencije EKOFIZIKA 2005, 21-22 Maj 2005, Kruševac

[88] Forkapić S., Bikit I., Slivka J., Čonkić Lj., Vesković M., Todorović N., Varga E., Mrđa D., Hulber E. : Indoor radon in rural dwellings of the south-Pannonian region , RADIATION PROTECTION DOSIMETRY, 2007, Vol. 123, str. 378-383, ISSN 0144-8420

[89] King P.T, Michel J. and Moore W.S., Ground Water Geochemistry of 228Rn, 226Rn and 222Rn, Geochim. Cosmochim. Acta, 46 (1982).

[90] Miles, J. C. H. and Howarth C.B.: Validation Scheme for Laboratories making Measurements of Radon in Dwellings: 2000 Revision NRPB-M1140; 2000, p.11

[91] Mettler, F; Upton, A.: Medical Effects of Ionizing Radiation, Second Edition, ISBN 0-7216-6646-9; 1995

[92] NRC (National Research Council). Committee on Health Effects of Exposure to Radon (BEIR VI), and Commission on Life Sciences. Health Effects of Exposure to Radon in Mines and Homes. Washington, D.C. National Academy Press. 1994

[93] Eszter Toth, Krisytian Hamori, Michael Minda: Indoor Radon in Hungary (Lognormal mysticism), RAD Laboratory, Boronkay, Vac, Hungary (et@hp.osski.hu)

[94] Dubois, G., Bossew, P., T. Tollefsen and M. De Cort (2010). First steps towards a European Atlas of Natural Radiation: Status of the European indoor radon map. Journal of Environmental Radioactivity, 101(10):786-798.

[95] S.Y.Y.Leung, D.Nikezic, K.N.Zu: Passive monitoring of the equilibrium factor inside a radon exposure chamber using bare LR 115 SSNTDs, Nuclear Inst. And Methods in Physics Research A 564 (2006) 319-323

[96] Nikezić D., Radon - glavni radioaktivni kontaminant čovekove okoline, Jonizujuća zračenja iz prirode (monografija), 145, Beograd, (1995)

[97] Karel Jilek, Josef Thomas and Ladislav Tomašek: First results of measurement of equilibrium factors F and unattached fractons fp of radon progeny in Czech dwellings, NUKLEONIKA 2010;55(4);439-444

[98] Reineking, A. and Porstendo[¬]rfer, J. Unattached Fraction of Short-lived Rn Decay Products in Indoor and Outdoor Environments: An Improved Single-screen Method and Results. Health Phys. 58(6), 715–727 (1990).

[99] Butterweck, G., Porstendo[°]rfer, J., Reineking, A. and Kesten, J. Unattached Fraction and the Aerosol Size Distribution of the Radon Progeny in a Natural Cave and Mine Atmospheres. Radiat. Prot. Dosim. 45, 167–170 (1992).

[100] Reineking, A., Butterweck, G., Kesten, J. and Porstendorfer, J. Thoron Gas Concentration and Aerosol Characteristics of Thoron Decay Products. Radiat. Prot. Dosim. 45, 353–356 (1991).

[101] A.Clouvas,S.Xanthos and M.Antonopoulos-Domis: Simultaneous measurements of indoor radon, radon-thoron progeny and high-resolution gamma spectrometry in Greek dwellings, Radiation Protection Dosimetry (2006),doi:10.1093/rpd/nci366, pp.1-9

[102] Dragoslav Nikezić: Merenje faktora ravnoteže kratkoživećih radonovih potomaka trag detektorima, Zbornik radova XXV Simpozijum DZZSCG Kopaonik 2009,str.9-19

[103] Janja Vaupotič, Ilona Hunyadi, Eszter Baradacs: Thorough investigation of radon in a school with elevated levels, Radiation Measurements 34 (2001), pp.477-482

[104] Forkapić, S., Mrda, D., Vesković, M., Todorović, N., Bikit, K., Nikolov, J., Hansman, J: Radon equilibrium measurement in the air Romanian Reports of Physics 58 (2013), pp. S141-S147

[105] V.Urosevic, D.Nikezic, S.Vulovic: A theoretical approach to indoor radon and thoron distribution, Journal of Environmental Radioactivity 99(2008) 1829-1833

[106] HASL 300 28th Edition, Environmental Measurements Laboratory, U.S. Department Laboratory, Section 2.Sampling, 2.2 Air, 2.24 Radon and thoron progeny, 2.2.4.4 Modified Kusnetz method

Kratka biografija



Sofija Forkapić (devojački Ćurčić) je rođena 26.decembra 1975.godine u Novom Sadu. Nakon završene Gimnazije "Jovan Jovanović Zmaj" u Novom Sadu, upisala je studije fizike na Prirodno-matematičkom fakultetu u Novom Sadu, gde je diplomirala 30.septembra 1999. godine. Poslediplomske studije – smer Fizika jezgra i elementarnih čestica pohađala je na Fizičkom fakultetu u Beogradu i magistrirala 07.03.2007. godine.

Mr Sofija Forkapić radi kao istraživač-saradnik na Prirodno-matematičkom fakultetu u Novom Sadu na Katedri za nuklearnu fiziku, Departmana za fiziku. Sofija Forkapić ima dugogodišnje iskustvo u naučno-istraživačkom radu i veliki broj publikovanih radova u međunarodnim časopisima. Trenutno je angažovana na dva naučna projekta kod Ministarstva za obrazovanje, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije i obavlja poslove rukovodioca za kvalitet dve akreditovane laboratorije za ispitivanje radioaktivnosti i etaloniranje gama-spektrometara na Katedri za nuklearnu fiziku. Doktorant mr Sofija Forkapić je aktivno uključena u izradu radonske mape Srbije i u toku 2011/2012. godine je učestvovala na obukama i radionicama European Commission Joint Research Centre, Ispra, Italija za izradu Evropske radonske mape i upravljanje i slanje podataka o monitoringu radioaktivnosti u REM bazu Evropske komisije.

Sofija Forkapić živi sa mužem i dva sina u Novom Sadu.

Novi Sad, 30.08.2013.

mr Sofija Forkapić

UNIVERZITET U NOVOM SADU PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Monografska dokumentacija
Tekstualni štampani materijal
Doktorska disertacija
mr Sofija Forkapić
prof.dr Ištvan Bikit
Istraživanje gasovitih radioaktivnih produkata uranijuma i
torijuma
srpski (latinica)
srpski/engleski
Republika Srbija
Vojvodina
2012
2013
Autorski reprint
Prirodno-matematički fakultet, Irg Dositeja Obradovica 4,
Novi Sad
(5 poglavlja / 159 strana /96 slika, grafikona / 45 tabela / 106
referenci)
F1Z1Ka
N. 1.1
INUKIEARNA HZIKA
Come analyticam strikely motode and displaying more to it
Gama-spektrometrijska metoda, radioaktivna ravnoteža, koncentracija aktivnosti radona i torona

PO UDK Čuva se: ČU Važna napomena: VN Izvod: IZ

Datum prihvatanja teme od NN veća: **DP** Datum odbrane: **DO** Članovi komisije: **KO** Predsednik: član:

član:

mentor:

Biblioteka departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu

nema

U okviru ove doktorske disertacije autor već duže vreme radi na razvijanju i primeni niskofonske gama-spektrometrije na određivanju sadržaja uranijuma i ostalih radionuklida gama emitera u uzorcima zemljišta i sedimenta, kao i na praćenju njihove distribucije i korelacije što je od značaja za mapiranje radioaktivnosti poljoprivrednog zemljišta. Pored toga doktorant se bavi proučavanjem ravnoteže u radioaktivnim nizovima uranijuma i torijuma, čiji gasoviti produkti radon ²²²Rn i toron ²²⁰Rn kao inertni gasovi difuzijom napuštaju mesto generisanja i na taj način obrazuju značajne koncentracije u zatvorenim prostorima, što predstavlja veliki problem za niskofonske podzemne laboratorije i radijacioni rizik izloženog stanovništva. U sklopu ovih istraživanja razvijen je i egzaktan matematički model za određivanje faktora ravnoteže između radona i torona i njihovih kratkoživećih produkata. Dobijeni rezultati će se koristiti za testiranje postojećih metoda merenja radona razvijenih u laboratoriji i primenu za merenje koncentracije aktivnosti radona u urbanim sredinama. Ujedno proučavanje ovih pojava i iznalaženje korekcija na raspad može imati primenu i u drugim nuklearnim analitičkim tehnikama kod kojih je period poluraspada mete uporediv sa vremenom merenja.

15.03.2012.

prof. dr Miroslav Vesković, redovni profesor nuklearne fizike na Prirodno-matematičkom fakultetu u Novom Sadu prof.dr Dušan Mrđa, vanredni profesor nuklearne fizike na Prirodno-matematičkom fakultetu u Novom Sadu prof.dr Dragoslav Nikezić, redovni profesor nuklearne fizike na Prirodno-matematičkom fakultetu u Kragujevcu prof.dr Ištvan Bikit, redovni profesor nuklearne fizike na Prirodno-matematičkom fakultetu u Novom Sadu

UNIVERSITY OF NOVI SAD FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS

KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number: ANO	
Identification number: INO	
Document type:	Monograph publication
DT	
Type of record:	Textual printed material
TR	
Content code:	PhD dissertation
CC	
Author:	Sofija Forkapić, MSc
AU	
Mentor/comentor:	dr Ištvan Bikit, full professor
MN	
Title:	Research of the gaseous radioactive products of uranium and
TI	thorium.
Language of text:	Serbian (Latin)
LT	
Language of abstract:	English
LA	
Country of publication:	Serbia and Montenegro
СР	
Locality of publication:	Vojvodina
LP	
Publication year:	2005
PY	
Publisher:	Author's reprint
PU	
Publication place:	Faculty of Science and Mathematics, Trg Dositeja Obradovića
PP	4, Novi Sad
<i>Physical description:</i> <i>PD</i>	5/159/96/45/106
Scientific field: SF	Physics
Scientific discipline:	Nuclear Physics
SD	
Subject/ Key words:	Gamma spectrometry method, radioactive equilibrium, activity
SKW	concentrations of radon and thoron
UC	
Holding data:	Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4

N	
Abstract:	In this dissertation the author has been working on the
AB	development and application of low-level gamma spectrometry
	method to determine the content of uranium and other
	radionuclides gamma emitters in soil and sediment, as well as
	monitoring their distribution and correlation which is important
	to map the radioactivity of agricultural soil. In addition, author
	studies the equilibrium in the radioactive series of uranium and
	thorium, which gaseous products radon ²²² Rn and thoron
	²²⁰ Rn as inert gases leave the place of origin by diffusion and
	thus forming significant concentrations indoors, which is a
	significant problem for the low-level underground laboratories
	and population radiation risk. As part of this research an exact
	model for the determination of radon and thoron equilibrium
	was developed. The results will be used to test existing
	methods of measuring radon developed in the laboratory and
	the application of the measurement of radon activity
	concentration in urban areas. At the same time the study of
	these phenomena and decay corrections may have application
	in other nuclear analytical techniques in which the half-life of
	the target is comparable with the time of measurement.
Accepted by the Scientific	15 th March 2012
Board:	
ASB	
Defended on:	
DE	
Thesis defend board:	
DB	
President:	dr Miroslav Vesković, Faculty of Sciences, Novi Sad
Member:	dr Dušan Mrđa, Faculty of Sciences, Novi Sad

none

dr Dušan Mrđa, Faculty of Sciences, Novi Sad dr Dragoslav Nikezić, Faculty of Sciences, Kragujevac dr Ištvan Bikit, Faculty of Sciences, Novi Sad

HD

Note: NT

Member:

Mentor:

166