

ПРИМЉЕНО:	24 СЕП 2001
ОРГАНИЗ.ЈЕД.	Б Р О Ј
0603	9/341

UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNOMATEMATIČKI FAKULTET
INSTITUT ZA FIZIKU

Mrđa Dušan

**GAMA-SPEKTROMETRIJSKO ODREĐIVANJE
KONCENTRACIJE OSIROMAŠENOG URANIJUMA
U ZEMLJIŠTU**

- DIPLOMSKI RAD -

Novi Sad, septembar 2001

Zahvaljujem se svim zaposlenim u Laboratoriji za Nuklearnu fiziku Instituta za fiziku, prirodnomatematičkog fakulteta u Novom Sadu na ukazanoj svestranoj pomoći prilikom izrade ovog diplomskog rada. Naročitu zahvalnost dugujem prof. dr Jaroslavu Slivki.

N.Sad, 20.09.2001.



SADRŽAJ

1. UVOD.....	4
2. URANIJUM I NJEGOVE OSOBINE	4
2.1. Osnovne karakteristike i rasprostranjenost uranijuma	4
2.1 . Uranijumovi radioaktivni nizovi.....	6
2.2 . Sekularna ravnoteža uranijumovog niza	7
2.3 . Radijaciono dejstvo i hemijska toksičnost uranijuma	8
3. OSIROMAŠENI URANIJUM.....	10
3.1 . Nuklearni gorivni ciklus	10
3.2 . Nastajanje osiromašenog uranijuma	11
4. URANIJUM U ZEMLJIŠTU.....	12
4.1 . Prirodni uranijum u nekontaminiranom zemljištu	12
4.2 . Kontaminacija zemljišta uranijumom prirodnog sastava.....	12
4.3 . Kontaminacija zemljišta osiromašenim uranijumom.....	13
5. METODE MERENJA KONCENTRACIJE URANIJUMA U ZEMLJIŠTU	14
6. MERENJE KONCENTRACIJE AKTIVNOSTI URANIJUMA U ZEMLJIŠTU U LABORATORIJI ZA NUKLEARNU FIZIKU IF	14
6.1 . MERNI UREĐAJ	15
6.1.1 . Gamma-X HPGe detektor.....	15
6.1.2 . Uređaji za obradu signala u spektrometarskom sistemu	17
6.1.3 . Niskofonska zaštita	18
6.2 . PROCEDURA MERENJA	19
6.2.1 . Kvalitativna i kvantitativna γ -spektrometrijska analiza	19
6.2.1.1 . Oblik vrha pune energije i određivanje površine vrha	20
6.2.1.2 . Kalibracija energije i efikasnosti.....	20
6.2.1.2.1 . Energijska kalibracija.....	20
6.2.1.2.2 . Kalibracija efikasnosti	22
6.2.1.3 . Programski paket za obradu spektara.....	24
6.2.2 . Gama spektrometrijska analiza prirodnog uranijuma u zemljištu.....	32
6.2.2.1 . Priprema uzorka za merenje.....	32
6.2.2.2 . Spektralne karakteristike γ linija uranijumovih nizova i mogućnosti određivanja sadržaja prirodnog uranijuma u uzorku na bazi γ spektra	32
6.2.3 . Gama spektrometrijska analiza osiromašenog uranijuma u zemljištu	35
7. REZULTATI MERENJA SADRŽAJA OSIROMAŠENOG URANIJUMA U ZEMLJIŠTU I DISKUSIJA	35
8. ZAKLJUČAK.....	39
REFERENCE.....	39

1. UVOD

Poznavanje koncentracije radionuklida u prirodi značajno je sa ekološko-zdravstvenog aspekta zbog toga što razvoj nuklearne energetike, kao i sve masovnija upotreba radioaktivnih izotopa u industriji i medicini, povećavaju opasnost od radioaktivnog zagađenja životne sredine. Donji prag štetnog dejstva jonizujućeg zračenja nije ustanovljen, te je neophodno da se registruju i najmanje promene aktivnosti radionuklida u prirodi. Preciznim merenjem, najčešće vrlo malih koncentracija radionuklida, omogućava se praćenje procesa njihovog transporta u realnim uslovima u zemljištu, površinskim i podzemnim vodama, atmosferi, prema živim organizmima.

Iz podataka dobijenih ovakvim merenjima, moguće je načiniti modele translokacije radionuklida pri određenim fizičko-hemijskim uslovima kako bi se procenilo usvajanje i akumulacija radionuklida u pojedinim karikama lanca ishrane i konačno u ljudskom organizmu. Takođe se može izvršiti proračun odgovarajućeg radijacionog rizika po zdravlje čoveka. Značajno je napomenuti da se ni proces dekontaminacije ne može pratiti ukoliko ne postoji mogućnost merenja malih aktivnosti.

Akcentat će nadalje biti stavljen na radioaktivne izotope uranijuma. Naime, osim prirodnih ležišta uranijuma, savremenom tehnologijom stvoreni su novi lokaliteti njegovog koncentrisanja [Slivka00], [Kovačević95], [Bikit93]: deponije pepela iz termoelektrana (jer uranijuma ima u uglju), urbane sredine (zbog prisustva uranijuma u građevinskom materijalu), poljoprivredna zemljišta (jer se uranijum javlja kao primesa u fosfatima koji su sirovina za veštačka đubriva). Takođe, analiza površinskih slojeva zemljišta u okolini fabrika za proizvodnju fosfora ili fosfornih đubriva pokazuje da su oni višestruko kontaminirani uranijumom u odnosu na dublje slojeve, zbog taloženja aerosola iz dima koji ispušta fabrika.

Uranijum je specifičan po tome što nakon njegove eksploatacije iz ruda, preostala jalovina može, obzirom na prisustvo dugoživećeg uranijumovog potomka ^{226}Ra ($T_{1/2} = 1620$ god.) predstavljati dugoročni ekološki problem. Poznavanje sadržaja uranijuma važno je i zbog njegove emanacije – radona, koji kao gas, dospeva u pluća čoveka, gde ovaj α -emiter može izazvati kancerogene promene.

Tokom NATO agresije na Jugoslaviju korišćena je municija sa osiromašenim uranijumom, pri čemu se izvesna količina ove radioaktivne i toksične supstance zadržala uglavnom u zemljištu. Pošto usled atmosferskih uticaja vremenom dolazi do dislociranja kontaminanta sa mesta udarne kontaminacije uz istovremeno njegovo razblaženje, važno je imati mogućnost merenja malih koncentracija osiromašenog uranijuma. Ovo predstavlja relativno složen analitički problem, naročito iz tog razloga što svako zemljište već ima u svom sastavu određenu koncentraciju prirodnog uranijuma.

Tema ovog diplomskog rada biće merenje koncentracije aktivnosti ^{238}U koji potiče iz osiromašenog uranijuma. U poglavlju 2 biće reči o najznačajnijim svojstvima uranijuma i njegovom radiološko-hemijskom uticaju na organizam čoveka. Treće poglavlje opisuje nastajanje osiromašenog uranijuma, a četvrto govori o kontaminaciji zemljišta uranijumom. U poglavlju br. 5 navode se različite metode merenja sadržaja uranijuma u zemljištu, dok se u šestom poglavlju govori o tome kako se vrše merenja na bazi gama spektrometrije u Laboratoriji za nuklearnu fiziku IF u Novom Sadu i navode rezultati merenja osiromašenog uranijuma u uzorcima zemlje uz diskusiju dobijenih rezultata.

2. URANIJUM I NJEGOVE OSOBINE

2.1. Osnovne karakteristike i rasprostranjenost uranijuma

Uranijum, U, je radioaktivni hemijski element III grupe, 7. periode (aktinoid) periodnog sistema elemenata, rednog broja 92, relativne atomske mase 238.029 i gustine $18,9 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$. To je

srebrnasto-siv metal čija je tačka topljenja 1403 K (1130°C). U prirodi predstavlja smešu tri izotopa: ^{238}U ili UI, ^{235}U ili AcU (aktinouran) i ^{234}U ili UII (tab.2.1.).

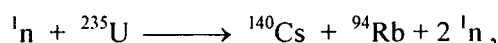
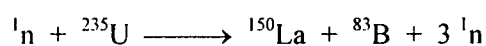
Tab.2.1. Izotopi uranijuma u prirodnom uranijumu

Izotop	Obilnost [%]	Tip raspada	Period poluraspada [god.]
^{238}U	99.2745±0.0015	α	(4.468±0.005)×10 ⁹
^{235}U	0.7200±0.0012	α	(7.037±0.011)×10 ⁸
^{234}U	0.0055±0.0005	α	(2.454±0.006)×10 ⁵

Atom uranijuma se odlikuje velikim naelektrisanjem jezgra i složenom elektronskom konfiguracijom. Za uranijum je karakteristična visoka hemijska aktivnost. On lako reaguje sa kiseonikom obrazujući okside (UO_2 , U_3O_8 i UO_8), ugljenikom, azotom, halogenim elementima, sumporom. U jedinjenjima se najčešće javlja u oksidacionim stanjima +4 i +6.

Šestovalentni uranijum u alkalnoj sredini obrazuje anjone uranata (UO_4)²⁻ i diuranata (U_2O_7)²⁻, dajući soli slabo rastvorne u vodi, dok u kiseloj i neutralnoj sredini ulazi u sastav kompleksnog jona uranila (UO_2)²⁺, dajući u vodi dobro rastvorljive soli i kompleksna jedinjenja. Jedinjenja četvorovalentnog uranijuma su po pravilu nerastvorljiva.

Jezgra uranijumovog izotopa ^{235}U su fisibilna, što znači da se cepaju pod dejstvom neutrona u lančanoj reakciji fisije. U ovom slučaju možemo kao primer navesti dve mogućnosti ostvarive u nuklearnoj fisiji:



pri čemu energija oslobođena po jednom aktu fisije iznosi oko 200 MeV.

Metalni uranijum se dobija redukcijom fluorida UF_4 i UF_6 kalcijumom ili magnezijumom.

Procenjuje se da u zemljinoj kori ima oko 1.3×10^{17} kg uranijuma u oko 200 minerala. Primarni minerali uranijuma su njegovi oksidi, kakav je npr. pehblenda U_3O_8 , koji sadrže primese olova, titana, gvožđa i torijuma.

Sekundarni minerali uranijuma su sulfati, karbonati, arsenati, vanadati, molibdati, silikati uranila i hidroksidi uranijuma.

Osim u litosferi, uranijum je prisutan i u hidrosferi i u živim organizmima. Od ukupne količine uranijuma u hidrosferi, 98% se nalazi u okeanima. Prisustvo uranijuma u površinskim i podzemnim vodama, koje su inače njegovi glavni transporteri, značajno varira, što je prvenstveno uslovljeno karakterom soli i gasova sadržanih u vodi.

Tabele 2.2. i 2.3. kvantitativno ilustruju rasprostranjenost uranijuma [Dangić95]. Koncentracija aktivnosti je izračunata iz masene koncentracije postupkom opisanim u [§2.2].

Tab. 2.2. Srednji sadržaji uranijuma u stenama i zemljištu

	s t e n e					zemljišta
	glinci	peščari	karbonatne	magmatske	graniti	
[mg/kg]	3.7	0.45	2.2	3.5	3.5	1
[Bq/kg]	48	5.8	28	45	45	13

Tab.2.3. Srednji sadržaji uranijuma u vodama, vegetaciji (pepeo) i živoj materiji

	rečna voda	okeanska voda	vegetacija (pepeo)	živa materija
[mg/kg]	0.04	0.003	0.5	< 0.010
[Bq/kg]	0.5	0.038	6.4	< 0.13

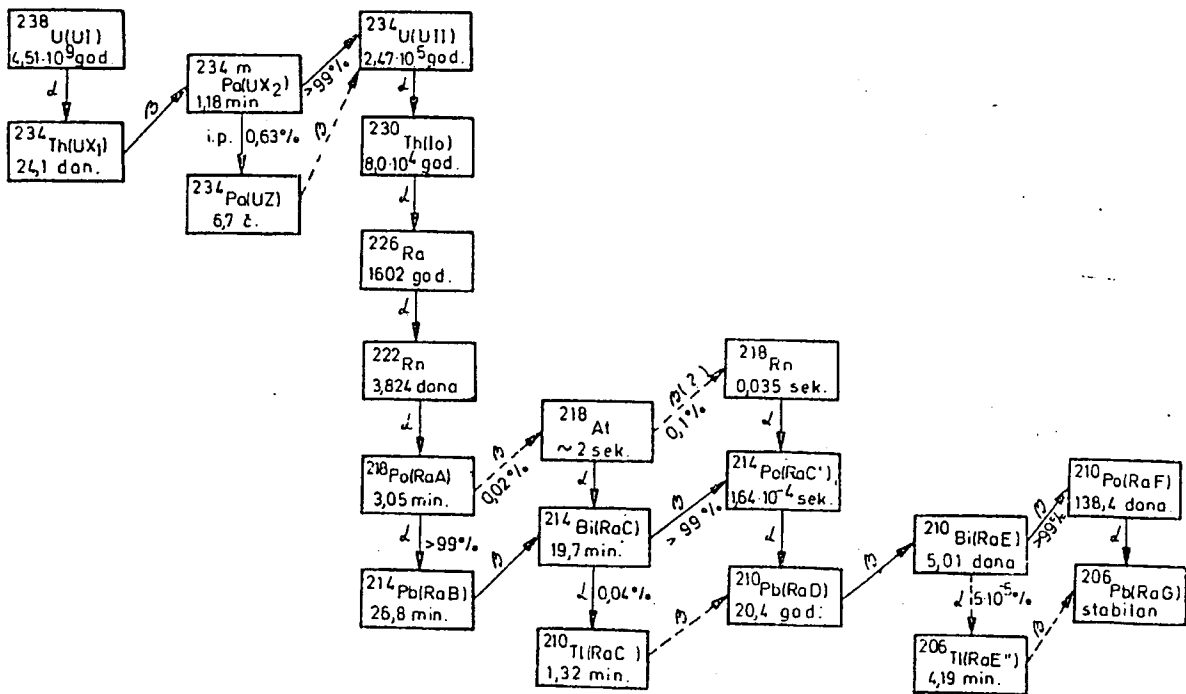
2.1. Uranijumovi radioaktivni nizovi

Postoje dva uranijumova niza:

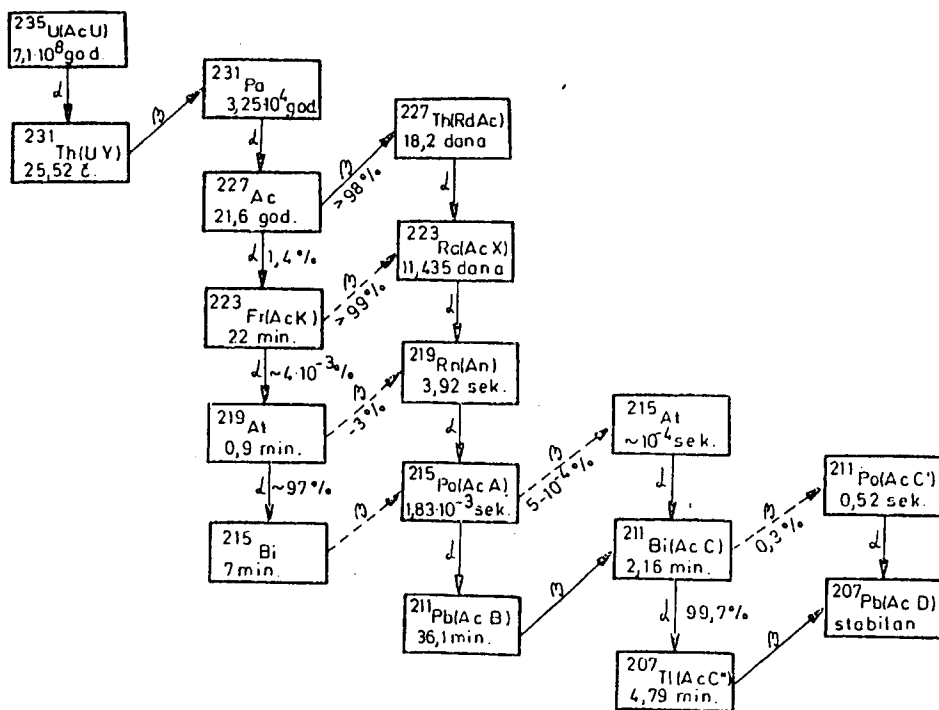
1) Uranijum-radijumov (rodonačelnik je ^{238}U , a maseni broj člana niza se može izraziti u obliku $A = 4n + 2$).

2) Uranijum-aktinijumov (rodonačelnik je ^{235}U , dok je maseni broj člana niza: $A = 4n + 3$).

Na slikama 2.1. i 2.2. šematski su predstavljeni uran-radijumov i uran-aktinijumov niz.



Sl. 2.1 Uranijum-radijumov niz



Sl. 2.2 Uranijum-aktinijumov niz

2.2. Sekularna ravnoteža uranijumovog niza

Aktivnost ili brzina raspada (dN_A/dt) nestabilnih jezgara izotopa A koja se dezintegrišu u stabilna jezgra B određena je samo brojem u posmatranom trenutku t još neraspadnutih jezgara N_A :

$$-\frac{dN_A}{dt} = \lambda_A N_A .$$

Nakon integracije, uz uslov da je za $t = 0$, $N_A = N_{A0}$, sledi zakon radioaktivnog raspada:

$$N_A = N_{A0} e^{-\lambda t} , \quad (1)$$

gde je λ_A konstanta radioaktivnog raspada jezgra A: $\lambda_A = 0.693/T_{1/2A}$.

Ako je i jezgro B, nastalo raspadom jezgra A, takođe radioaktivno, brzina kojom nastaju jezgra B biće $\lambda_A N_A$, a kojom nestaju $\lambda_B N_B$, tako da će priraštaj broja jezgara B u jedinici vremena biti:

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_A N_A - \lambda_B N_B . \quad (2)$$

Zamenom (1) u (2) i integracijom (rešavanjem nehomogene diferencijalne jednačine uz početni uslov $t = 0$, $N_B = N_{B0}$), dobija se zakon nakupljanja radioaktivnog jezgra-potomka B u izvoru-pretku A:

$$N_B(t) = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} N_{A0} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) . \quad (3)$$

Ukoliko se polazno jezgro raspada daleko sporije od produkata njegovog raspada ($\lambda_A \ll \lambda_B$), jednačina (3), pri uslovu $t \gg T_{1/2B}$, dobija oblik:

$$\frac{N_B(t)}{N_A(t)} = \frac{\lambda_A}{\lambda_B} = \frac{T_{1/2B}}{T_{1/2A}} , \quad \text{ili} \quad \frac{\lambda_B N_B}{\lambda_A N_A} = 1 .$$

Ovaj izraz karakteriše stanje stabilne (sekularne) ravnoteže pri kojoj se aktivnosti pretka A i potomka B izjednačavaju.

U slučaju tri ili više radioaktivnih jezgara A, B, C, ... koja su međusobno vezana u pogledu generisanja (B je potomak od A, C je potomak od B, itd.), sa konstantama raspada $\lambda_A \ll \lambda_B < \lambda_C < \dots$ (odn. $T_{1/2A} \gg T_{1/2B} > T_{1/2C} > \dots$), po isteku dovoljno dugog vremena nastaje ravnoteža, kako za jezgro B, tako i za sva naredna. U tom stanju zasićenja aktivnost polaznog dugoživećeg jezgra jednaka je aktivnosti svakog od sukcesivnim raspadom dobijenih potomaka, a relativne količine pojedinih produkata obrnuto su srazmerne njihovim konstantama raspada (tj. direktno srazmerne njihovim periodima poluraspada).

Sada se nameće pitanje – koje je to dovoljno dugo vreme navedeno kao uslov za nastupanje radioaktivne ravnoteže? To se vreme (t_{rav}) nalazi iz:

1) Uslova ravnoteže $-\lambda_A N_A(t) = \lambda_B N_B(t)$, ili

2) Nalaženjem maksimuma funkcije $N_B(t)$ iz jednačine (3), tj. iz uslova $dN_B(t)/dt = 0$,

što u oba slučaja dovodi do istog izraza:

$$t_{\text{rav}} = \frac{1}{\lambda_B - \lambda_A} \ln \frac{\lambda_B}{\lambda_A} .$$

U skladu sa ovom jednačinom i eksperimentalnim iskustvom nađeno je da mora biti bar $t_{\text{rav}} = 10 T_{1/2B}$. Imajući ovo u vidu, ravnoteža između ^{238}U ($T_{1/2} = 4.47 \times 10^9$ a) i njegovog potomka ^{226}Ra ($T_{1/2} = 1620$ a) nastupila bi nakon $t > 10 \times 1620 = 16200$ godina i tada bi na svakih 2.8×10^6 atoma uranijuma dolazio jedan atom radijuma.

U stvarnosti, ova ravnoteža se uspostavlja samo u drevnim, dobro očuvanim mineralima, dok u mnogim slučajevima može biti poremećena, i to uglavnom pod uticajem raznih geohemijskih procesa, koji dovode do rastvaranja i ispiranja radijuma iz minerala.

Drugi najverovatniji uzrok narušavanja ravnoteže niza ^{238}U je emaniranje radona, tj. prelazak gasa radona iz uzorka u okolnu sredinu. Sposobnost emaniranja nije specifična karakteristika minerala nego rezultat njegovog fizičkog stanja (poroznosti, krupnoće zrna, kompaktnosti strukture, adsorpcionih osobina) i stanja vanjske sredine (p , T , vlažnost). Emaniranje radona ima za posledicu manji sadržaj radona i njegovih potomaka u uzorku od odgovarajućih ravnotežnih sa uranijumom.

Utvrđivanje postojanja stabilne radioaktivne ravnoteže u radioaktivnom nizu ima veliki značaj, jer ravnoteža omogućava da se odredi sadržaj jedog člana niza na osnovu merenja sadržaja nekog drugog člana tog niza.

Izračunavanje koncentracije aktivnosti [Bq/kg] prirodnog uranijuma u uzorku, ako znamo masenu koncentraciju [mg/kg], vrši na osnovu činjenice da je specifična aktivnost prirodnog uranijuma $a(\text{prir.U}) = 12.83 \times 10^6$ Bq/kg. Ova vrednost je dobijena kao zbir specifičnih aktivnosti izotopa ^{238}U i ^{235}U , budući da su oni rodonačelnici radioaktivnih nizova, a na osnovu njihovih konstanti raspada ($\lambda_{\text{U}238}$, $\lambda_{\text{U}235}$) i izotopske obilnosti u prirodnom uranijumu. Naime, aktivnost jedinične mase prirodnog uranijuma može se izraziti kao $A_1 = \lambda_{\text{U}238} N_{\text{U}238} + \lambda_{\text{U}235} N_{\text{U}235}$, gde su $N_{\text{U}238}$ i $N_{\text{U}235}$ brojevi atoma izotopa ^{238}U i ^{235}U u jedinici mase respektivno. Specifična aktivnost izotopa ^{238}U iznosi $a(^{238}\text{U}) = 12.35 \times 10^6$ Bq/kg.

Znači, 1 mg čistog prirodnog uranijuma ima aktivnost od 12.83 Bq, odnosno koncentracija prirodnog uranijuma od 1 ppm ekvivalentna je uranijumovoj koncentraciji aktivnosti od 12.83 Bq/kg. Tabela 2.3.a. pregledno prikazuje odnose između odgovarajućih jedinica mere.

Tab.2.3.a. Ekvivalentnost mernih jedinica

	masena koncentracija [ppm]	koncentracija aktivnosti [Bq/kg]
prirodni uranijum	1	12.83
	0.078	1
^{238}U	1	12.35
	0.081	1

2.3 . Radijaciono dejstvo i hemijska toksičnost uranijuma

Štetno dejstvo uranijuma se ispoljava na više načina:

- udisanjem radioaktivnih aerosola iz vazduha,
- konzumiranjem uranijumom kontaminirane hrane,
- preko radioaktivnog gasa radona – emanacije uranijuma,
- preko spoljašnjeg γ i β zračenja uranijumovih potomaka.

Dakle, opasnost za čoveka od uranijuma je multiplicirana radioaktivnim dejstvom produkata njegovog raspada.

Uranijum i uranijumovi potomci radijum i radon su značajni α -emiteri, ali obzirom na kratak domet α -čestica, štetno radijaciono dejstvo ispoljavaju tek uneseni u čovečiji organizam. Alfa-čestice, prodirući kroz tkivo, izazivaju jonizaciju atoma, a zatim formiranjem slobodnih radikala dolazi do promena u molekulima koji su biološki važni za funkcije ćelije.

Pored štetnog radijacionog dejstva, uranijum unesen u organizam izaziva i specifičan hemijski intoksikacioni efekat čiji karakter zavisi od načina na koji je došlo do intoksikacije (dodirom, udisanjem, gutanjem) kao i od vrste uranijumovog jedinjenja koje ju je izazvalo (lakorastvorno – uranijum u stanju U^{6+} , slaborastvorno – uranijum u stanju U^{4+}).

Klinička slika trovanja je, međutim, ista i kod trovanja sa lako i sa teško rastvornim solima uranijuma, i u akutnoj i u hroničnoj formi. Razlikuje se samo po vremenu pojave simptoma, a prvi simptomi su: žeđ, povraćanje, malaksalost, porast temperature, ubrzani puls. Oko 70% rastvornog

oblika uranijuma koji je inhalacijom ili oralnom ingestijom dospao u krvotok, izluči se preko urina u toku prvih 24 časa. Ostatak se deponuje u bubrezima (izazivajući ubrzo poremećaj u njihovom radu) i kostima gde radijacionim dejstvom na koštanu srž uslovljava specifične biohemijske promene krvi. Patomorfološka ispitivanja mogu pokazati i izmene na plućima, (u slučaju intoksikacije inhalacijom), limfnim čvorovima, slezini i dr.

Teškorastvorna uranijumova jedinjenja imaju manju toksičnost ako su unesena u probavni trakt jer se odatle brzo eliminišu, no predstavljaju veliku opasnost pri inhalacionom unošenju jer se dugotrajno inkorporiraju u plućima.

U sledećim tabelama predstavljene su granične vrednosti za unošenje uranijuma u organizam čoveka, kao i dozvoljene granične vrednosti koncentracije uranijuma u vazduhu i vodi, na osnovu ICRP72 (International Commission on Radiological Protection, Tab. 2.4. i Tab. 2.5.); [ATSDR97] i WHO (World Health Organization, Tab. 2.6.); [WHO98].

Tab. 2.4. Inhalacija uranijuma (zasnovano na radiološkim efektima)

	n e r a s t v o r l j i v i			r a s t v o r l j i v i		
	faktor doze [mSv/mg]	A L I [mg]	D A C [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	faktor doze [mSv/mg]	A L I [mg]	D A C [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]
prirodni uranijum sa potomcima	0.70	1.42	0.18	1.6	0.63	0.08
čisti prirodni uranijum	0.22	4.5	0.58	0.013	74.5	9.4
osiromašeni prirodni uranijum	0.12	8.3	1.05	0.0075	134	17
osiromašeni reciklirani uranijum	0.19	5.27	0.67	0.012	85.1	11

Faktor doze predstavlja dozu zračenja koju primi organizam ako se u njega unese jedinična masa [mg] radioaktivne supstance.

A L I = Annual Limit on Intake based on 1 mSv/a (Godišnja granica unosa zasnovana na 1 mSv/god).

D A C = Derived Air Concentration based on 1 mSv/a (Izvedena koncentracija u vazduhu zasnovana na 1 mSv/god).

Tab.2.5. Oralna ingestija uranijuma (zasnovano na hemijskoj toksičnosti)

	T D I [$\mu\text{g}/(\text{kg d})$]	A L I [mg]	DDWC [mg/l]
W H O	0.6	15.3	31

T D I = Tolerable Daily Intake (Tolerisani dnevni unos).

A L I = Annual Limit on Intake based on 70 kg body weight (Godišnja granica unosa bazirana na 70 kg telesne težine).

D D W C = Derived Drinking Water Concentration based on 500 l/a (Izvedena koncentracija u pijaćoj vodi bazirana na 500 l/god).

Tab.2.6. Oralna ingestija uranijuma (zasnovano na radiološkim efektima)

	faktor doze [mSv/g]	A L I [mg]	D D W C [$\mu\text{g/l}$]
prirodni uranijum sa potomcima	31.7	31.5	63
čisti prirodni uranijum	1.23	813	1630
osiromašeni prirodni uranijum (0.2%)	0.71	1410	2820
osiromašeni reciklirani uranijum (0.2 %)	1.08	923	1850

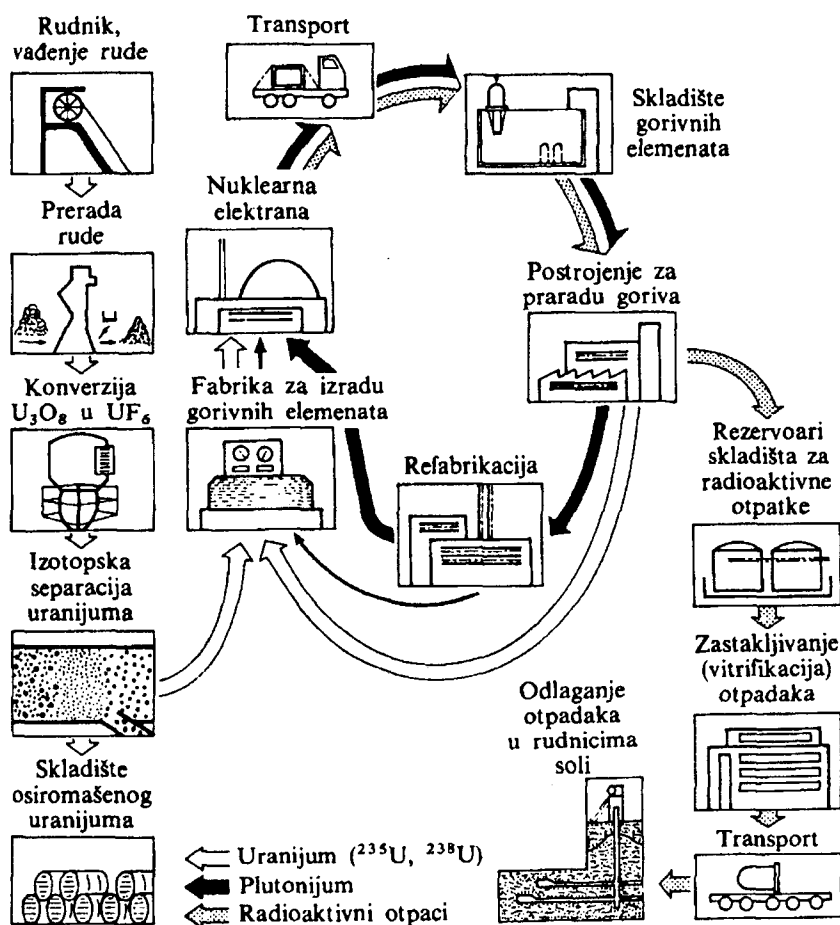
A L I = Annual Limit on Intake based on 1 mSv/a.

D D W C = Derived Drinking Concentracion based on 1 mSv/a; 500 l/a.

3. OSIROMAŠENI URANIJUM

3.1. Nuklearni gorivni ciklus

Da bi se iskoristio energetski potencijal nuklearnih goriva, potrebni su različiti procesi obrade. Taj se tok goriva naziva nuklearnim gorivnim ciklusom (sl. 3.1).



Sl. 3.1. Shema gorivnog ciklusa

Dakle, gorivni ciklus počinje proizvodnjom fisionog materijala, a završava se odlaganjem ozračenih gorivnih elemenata ili visokoradioaktivnih proizvoda fisije izdvojenih iz njih u procesu prerade.

3.2. Nastajanje osiromašenog uranijuma

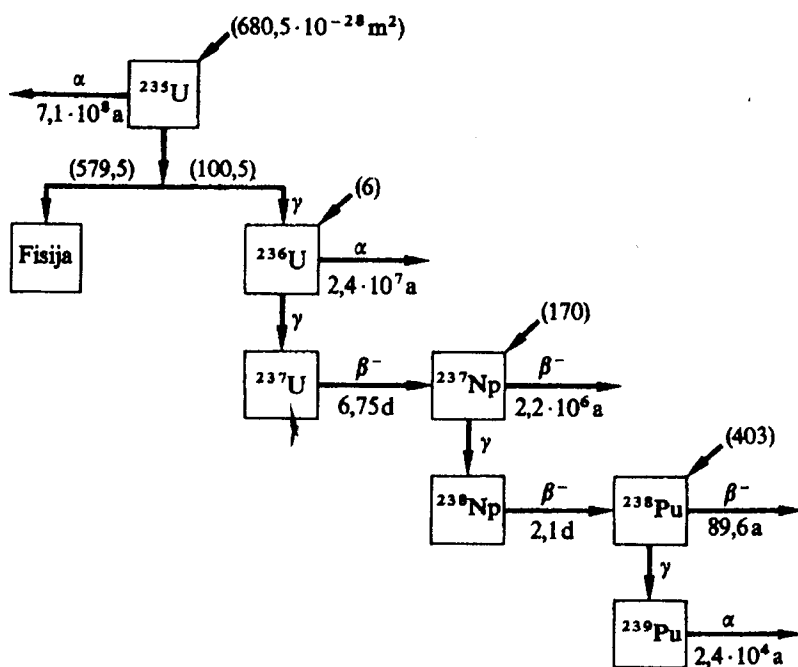
Kao najvažnije gorivo u nuklearnom reaktoru upotrebljava se uranijum. Pošto samo uranijumov izotop ^{235}U održava lančanu reakciju fisije, a nalazi se u vrlo malom procentu (0.72%) u prirodnom uranijumu, ukazala se potreba za izdvajanjem tog izotopa, a kasnije za "obogaćivanjem" uranijuma izotopom 235. U uranijumu 235 lančana reakcija se može postići i termičkim i brzim neutronima. Mnogi termički reaktori kao gorivo upotrebljavaju obogaćeni uranijum i to od malih iznosa ($\approx 3\%$) pa do preko 90% ^{235}U . Obogaćivanje uranijuma izotopom 235 moguće je izvršiti gasnom difuzijom pomoću jedinjenja UF_6 koje može da egzistira u gasovitoj formi.

Sa druge strane, onaj prirodni uranijum iz koga je izotopskom separacijom izdvojen izotop ^{235}U , tako da je sadržaj uranijuma 235 smanjen u odnosu na nivo u prirodnom uranijumu (npr. 0.2% ^{235}U), naziva se *osiromašeni prirodni uranijum*.

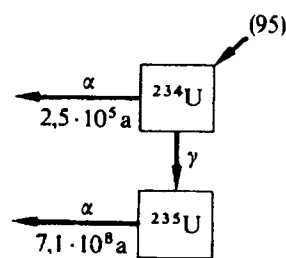
Osiromašeni uranijum se dobija i kao posledica "izgaranja" goriva u nuklearnom reaktoru. Naime, zbog fisije i radijativne apsorpcije neutrona smanjuje se udeo izotopa ^{235}U u gorivu tj. uranijumu (sl. 3.2). Takođe, udeo izotopa ^{234}U se smanjuje zbog radijativne apsorpcije neutrona čime se dobija ^{235}U koji je fisibilan (sl. 3.3).

Izdvajanjem visokoradioaktivnih produkata fisije iz iskorištenog goriva, a zatim separacijom određenog iznosa ^{235}U , kao ostatak dobijamo *osiromašeni reciklirani uranijum*.

Znači, i osiromašeni uranijum predstavlja smešu izotopa ^{238}U , ^{235}U i ^{234}U , ali sa udelom dva lakša izotopa 3-4 puta manjim od udela u prirodnom uranijumu. Aktivnost osiromašenog uranijuma iznosi oko 60% aktivnosti prirodnog uranijuma, što je prvenstveno uslovljeno smanjenjem aktivnosti ^{234}U .



Sl. 3.2. Lanac transformacije teških nuklida u reaktoru iz ^{235}U



Sl. 3.3. Lanac transformacije teških nuklida u reaktoru iz ^{235}U

4. URANIJUM U ZEMLJIŠTU

4.1. Prirodni uranijum u nekontaminiranom zemljištu

Srednji sadržaj uranijuma u zemljinoj kori je oko $3 \times 10^{-4}\%$, a u gornjim slojevima se procenjuje da ga ima u količini od oko 10^{15} t. Koncentracija aktivnosti uranijuma u zemljištu u raznim zemljama u svetu kreće se od 7 - 40 mBq/g, iako ima područja (npr. Peru), gde stene imaju aktivnost 70 mBq/g. Smatra se da se u zemljištu uranijum nalazi u dva osnovna oblika i to kao inertni i mobilni oblik. Inertni oblik uranijuma, koji čini 97% od ukupnog uranijuma, nije od velikog značaja, jer praktično ne migrira kroz biosferu, dok mobilni oblik (0.1-3%) ima ogroman ekološki i biološki značaj, pošto može preći iz zemljišta u biljke procesom jonske izmene ili u obliku kompleksnih jedinjenja sa organskim kiselinama iz korenovog sistema [Sarić 96].

Koncentracija uranijuma u zemljištu veoma se razlikuje u pojedinim delovima sveta (Tab. 4.1) [Kljajić95].

Tab. 4.1. Koncentracija uranijuma u zemljištu

Područje	U [ppm]	U [Bq/kg]
Novi Zeland	60	769.8
S A D	0.2-47	2.6 - 603
Francuska	1.2-37.6	15.4 - 482.4
Gabon	1-100	12.8 - 1283
Poljska	0.5-12.5	6.4 - 160.4
S S S R	0.2-13	2.6 - 166.8
Japan	0.7-1.9	9.0 - 24.4
Srbija	0.08-5.9	1.0 - 75.7

4.2. Kontaminacija zemljišta uranijumom prirodnog sastava

Prilikom proizvodnje električne energije u termoelektranama na uglj, dolazi do emisije značajne količine prirodnih radionuklida uranijumovog niza, koji su pretežno koncentrisani u pepelu i šljaci. Ovim dolazi do preraspodele prirodne radioaktivnosti sadržane u uglju, koja pre sprovođenja tehnološkog postupka kopanja i sagorevanja nije bitnije uticala na zagađivanje životne sredine, odnosno zemljišta.

Naši ligniti sadrže uranijum u količini od oko 5 g/t. Na osnovu te činjenice je proračunato da sagorevanjem uglja, godišnje u atmosferu biva izbačeno oko 4500 kg uranijuma [Stanković95]. Zato se tehnološki uslovljenoj povišenoj prirodnoj radioaktivnosti mora posvećivati više pažnje.

Sve veća primena savremenih agrotehničkih mera koje se zasnivaju na korišćenju fosfatnih đubriva takođe dovodi do preraspoređivanja prirodnih radionuklida iz unutrašnjosti zemljine kore na njenu površinu. Hrana proizvedena na njivama na kojima se koristi mineralno đubrivo sadrži u većoj ili manjoj meri prirodni uranijum i njegove potomke. Ma koliko mali bio sadržaj prirodnih radioaktivnih izotopa u zemljištu, odnosno hrani, on se voljom čoveka sistematski povećava i dovodi do ozračivanja stanovništva većeg nego što je to prirodnim procesima bilo regulisano.

Ilustrujmo ovo sledećim primerom: Ako se zemljište u kome je prosečna koncentracija uranijuma oko 1 ppm đubri maksimalnom dozom od 150 kg/ha đubriva godišnje, a u đubrivu se procenjuje da ima oko 100 ppm uranijuma, značilo bi da u oraničnom sloju jednog hektara (dubine do 30 cm) čija je masa $M_0 = V\rho \approx 3 \times 10^6$ kg ima redovno oko $m_U = 10^{-6} \times 3 \times 10^6 \approx 3$ kg uranijuma, a da godišnji priraštaj mase uranijuma u njemu usled đubrenja iznosi $m_{U1} \approx 100 \times 10^{-6} \times 150$ kg ≈ 15 g. Ili, drugačije, očekuje se da 30 godina ovakvog intenzivnog đubrenja može povisiti koncentraciju uranijuma u zemljištu za ekstremno 15%.

Tabela 4.2 prikazuje sadržaj ^{238}U i ^{235}U u fosfatima i kompleksnim đubrivima [Manojlović89].

Tab. 4.2. Koncentracija aktivnosti ^{235}U i ^{238}U u sirovim fosfatima, superfosfatu i kompleksnim đubrivima

UZORAK	^{238}U [Bq/kg]	^{235}U [Bq/kg]
Sirovi fosfat(Sirija)	610(60)	21(4)
Sirovi fosfat(Maroko)	1050(80)	32(5)
Superfosfat	350(40)	13(3)
Monoamonijumfosfat	58(11)	3(2)
Diamonijumfosfat	71(9)	11(2)
N P K 5:10:20	160(30)	6(3)
N P K 17:13:10	113(24)	6(3)
N P K 27:14:0	210(50)	11(3)
N P K 8:24:16	179(18)	9(2)
N P K 0:25:25	267(28)	6(5)

4.3. Kontaminacija zemljišta osiromašenim uranijumom

Osiromašeni uranijum se koristi u vojnoj industriji kod proizvodnje municije. Naime, probojna moć projektila koji sadrži osiromašeni uranijum znatno je veća u odnosu na klasični projektil zbog velike mase uranijumovih atoma i velike gustine ovog hemijskog elementa., što dolazi do izražaja prilikom udara projektila u čvrstu prepreku.

U tom slučaju će 18-70% sadržaja probojnog dela projektila (penetratora) načinjenog od osiromašenog uranijuma sagoreti i oksidovati u prašinu, obično mutno crne boje, premda se može pojaviti tamnozlatna ili tamnozeleno boja.

Od dva formirana uranijumova oksida, UO_2 nije rastvorljiv u vodi, dok se UO_3 rastvara gradeći uranil (UO_2)²⁺ jone. Prašina uranijumovih oksida sadrži 50-96% sitnih, respiratorno unosivih čestica (prečnika manjeg od 10 μm), a 17-48% ovih čestica su rastvorljive u vodi. Za razliku od krupnijih, masivnijih čestica koje brzo padaju na tlo, sitne čestice se u vazduhu zadržavaju satima, postepeno se taložeći [Rostker98].

Razmotrimo kao primer udar u čvrstu prepreku jednog tenkovskog projektila sa 5.35 kg osiromašenog uranijuma .Nivo inicijalne površinske kontaminacije zemljišta može se aproksimativno predstaviti 2-D Gausovom distribucijom.

Područje nepristupačno za ljude u fazi početne kontaminacije ima površinu od oko 0.8 hektara (krug poluprečnika 50 m). U centru kruga (mesto udara projektila) površinska kontaminacija dostiže maksimum. Ukoliko se relativno brzo ne izvrši dekontaminacija terena, dolazi do migracije uranijuma, tj. njegovog dislociranja i rasprostiranja na veću površinu [Analysis96].

Uranijum je u površinskim uslovima u U^{4+} stanju slabo migrativan. Međutim, u sredinama sa visokim oksidacionim potencijalom prelazi u U^{6+} stanje i obrazuje uranil-jon koji je veoma migrativan. Migrativnost u vodi mu ograničavaju adsorpcija na mineralima glina i ferihidroksidu, obrazovanje sekundarnih minerala (kompleksni karbonati, fosfati i dr.), kao i redukcioni uslovi .

Dakle, u interakciji voda-zemljište uranijum može da pređe u rastvor i u zavisnosti od daljih geohemijskih uslova i procesa rasejava se u vodama, zemljištu i stenama, ili se na pojedinim mestima u većoj ili manjoj meri akumulira.

5. METODE MERENJA KONCENTRACIJE URANIJUMA U ZEMLJIŠTU

Za određivanje koncentracije uranijuma mogu se primeniti dve grupe laboratorijskih metoda analize :

- a) klasične hemijske,
- b) radiometrijske.

Hemijske analize su skupe, zamorne i dugotrajne i visoku tačnost imaju samo pri relativno velikim koncentracijama. Stoga se primenjuju retko i to uglavnom kao kontrolni metod i pri izradi etalona neophodnih za radiometrijske analize.

Radiometrijskim metodama određuje se sadržaj uranijuma na bazi emitovanog zračenja. U određenim slučajevima to podrazumeva specifičnu hemijsku obradu uzorka pre merenja (tzv. radiohemijske metode).

Navedimo sada konkretno nekoliko metoda koje su u upotrebi :

1) Alfa spektrometrija. Pošto su uranijumovi izotopi α -emiteri, moguće ih je detektovati i utvrditi njihovu koncentraciju na osnovu α čestica karakteristične energije-obično primenom detektora visoke rezolucije (površinsko-barijernog poluprovodničkog detektora). Međutim, zbog malog dometa α -zraka, ova metoda zahteva složenu analitičku proceduru pripreme uzorka u obliku veoma tankog sloja.

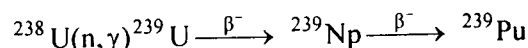
2) Gama spektrometrija. Analiziranjem γ linija uranijumovih nizova, dobijamo informaciju o koncentraciji uranijuma. Priprema uzorka ne zahteva nikakvo njegovo hemijsko tretiranje.

3) Rentgenska fluorescentna analiza. K-linije X-fluorescentnog zračenja uranijuma mogu se pobuditi pomoću pogodnih radioaktivnih izvora i spektralno razložiti na Si(Li) ili Ge(Li) detektoru..

4) Neutronima indukovana fisija. Određivanje sadržaja uranijuma vrši se primenom (n,f) reakcije i registrovanjem nastalih radioaktivnih fragmenata fisije izazvane neutronima. Pošto je domet fragmenata mali, analizirani uzorak se stavlja u jonizacionu komoru i određuju se promene jonizacione struje pri unošenju komore u polje neutrona.

5) Fluorofotometrija. Ovo je jedna od najstarijih metoda (datira od 1935 . god.). Procedura je sledeća: uzorak se rastvori u HNO₃, otpipetira oko 0.1 ml i upari do suva, doda NaF i to rastopi u poseboj peći. Nakon hlađenja vrši se ozračivanje pomoću Hg-lampe (365 μ m) i nastala fluorescencija registruje fotoelektričnim fluorofotometrom.

6) Neutronska aktivaciona analiza (NAA). Metod se zasniva na reakciji zahvata neutrona:



Ovaj sukcesivni β -raspad pruža dve mogućnosti za merenje sadržaja uranijuma: γ -spektrometrijsko merenje aktivnosti kratkoživećeg izotopa ^{239}U ($T_{1/2} = 23.5$ min) ili njegovog dugoživećeg potomka ^{239}Np ($T_{1/2} = 56.5$ h). Međutim, neutronske ozračivanjem uzorka dolazi do aktiviranja i velikog broja drugih elemenata, te se ^{239}U , odnosno ^{239}Pu moraju separisati hemijskim putem.

6. MERENJE KONCENTRACIJE AKTIVNOSTI URANIJUMA U ZEMLJIŠTU U LABORATORIJU ZA NUKLEARNU FIZIKU IF

Laboratorija za nuklearnu fiziku pri Prirodnomatematickom fakultetu u Novom Sadu poseduje opremu, kadar, metodologiju, višegodišnje iskustvo i priznate rezultate u vezi sa *gama-spektrometrijskim* određivanjem malih koncentracija uranijuma u zemljištu. Uticaj upotrebe fosfornih đubriva na kontaminaciju zemljišta uranijumom predstavljen je u [Bikit93], [Sarić93], dok je proces transporta uranijuma iz zemljišta sa povišenim nivoom prirodne radioaktivnosti (jalovina rudnika uranijuma

Kalna) i njegove akumulacije u biljke čiji se delovi koriste u ljudskoj ishrani proučavan u [Bikit95] i [Sarić96].

U ovoj laboratoriji razvijen je i metod γ -spektrometrijskog određivanja niske koncentracije aktivnosti ^{238}U u zemljištu koja potiče od *osiromašenog* uranijuma, što je predmet razmatranja ovog rada.

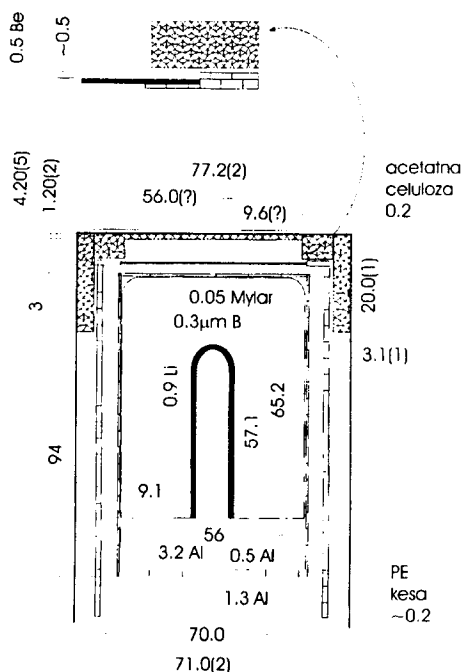
6.1. MERNI UREĐAJ

U Laboratoriji za nuklearnu fiziku IF instaliran je gama spektrometrijski sistem za merenje niskih aktivnosti, a sastoji se iz detektora, niskofonske zaštitne komore, bloka uređaja za obradu signala, kalibracionih izvora, kao i računara sa odgovarajućim softverom.

6.1.1. Gamma-X HPGe detektor

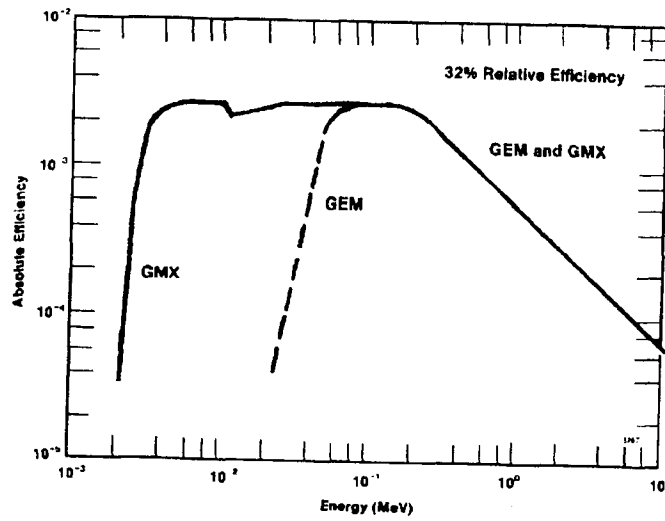
Merenja se vrše na poluprovodničkom detektoru čiji je detektorski element (aktivna zapremina) izrađen od germanijuma visoke čistoće (HPGe), proizvođača ORTEC, SAD, tipa LLB-GMX-HJ, relativne efikasnosti 32%. Oznaka LLB ("Very-Low-Background") znači da je detektor namenjen merenjima u uslovima niskog fona, a oznaka HJ karakteriše konfiguraciju kriostatskog sistema koja to omogućuje. GMX (gamma-X) detektor je koaksijalni Ge detektor dizajniran i za X i za γ spektroskopiju (Sl. 6.1). Spoljašnji jonski implantiran kontakt detektorskog elementa sadrži bor i ima debljinu $0.3\ \mu\text{m}$, dok obični koaksijalni HPGe detektori (GEM) imaju spoljašnji kontakt debljine od $500\ \mu\text{m}$ do $1000\ \mu\text{m}$. Upravo zahvaljujući toj činjenici, efikasnost detektovanja niskoenergetskih γ -kvanata ($E_\gamma < 100\ \text{keV}$) kod GMX detektora je znatno veća nego kod običnih HPGe detektora (Sl. 6.2). Unutrašnji kontakt je litijumski difuzioni sloj debljine $0.9\ \text{mm}$. Tanki ulazni prozor načinjen je od berilijuma debljine $0.5\ \text{mm}$, koeficijenta transparentije $\approx 95\%$ na $5.9\ \text{keV}$.

Radna temperatura od $77\ \text{K}$ održava se pomoću kriostata koji je u kontaktu sa tečnim azotom čuvanim u Djuarovom sudu. Kriostatska konfiguracija HJ (Sl.6.3) dozvoljava da se sam detektor, i pored postojanja jednog stepena nikofonske zaštite (komora), dodatno opkoli zaštitnim materijalom, čime bi se okružujući fon redukovao za još jedan red veličine, a naročito doprinos fona od Djuarovog suda.

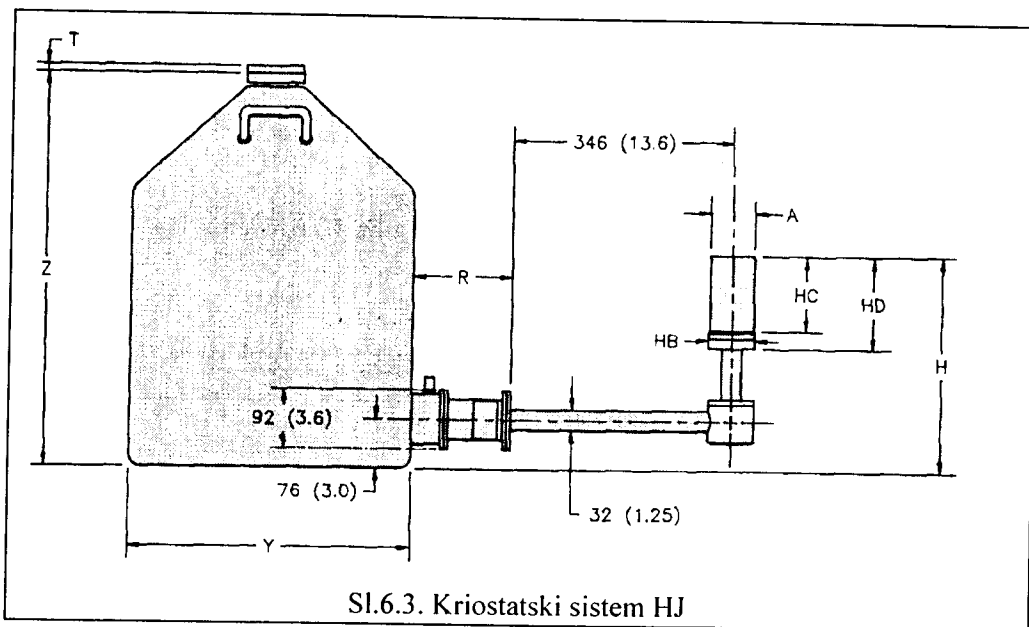


Sl.6.1. Presek LLB-GMX-HJ detektora sa zaštitnom Al kapsulom i poklopcem od polietilena





Sl. 6.2. Efikasnost Gamma-X detektora (GMX) u funkciji energije u poređenju sa običnim HPGe detektorom (GEM)

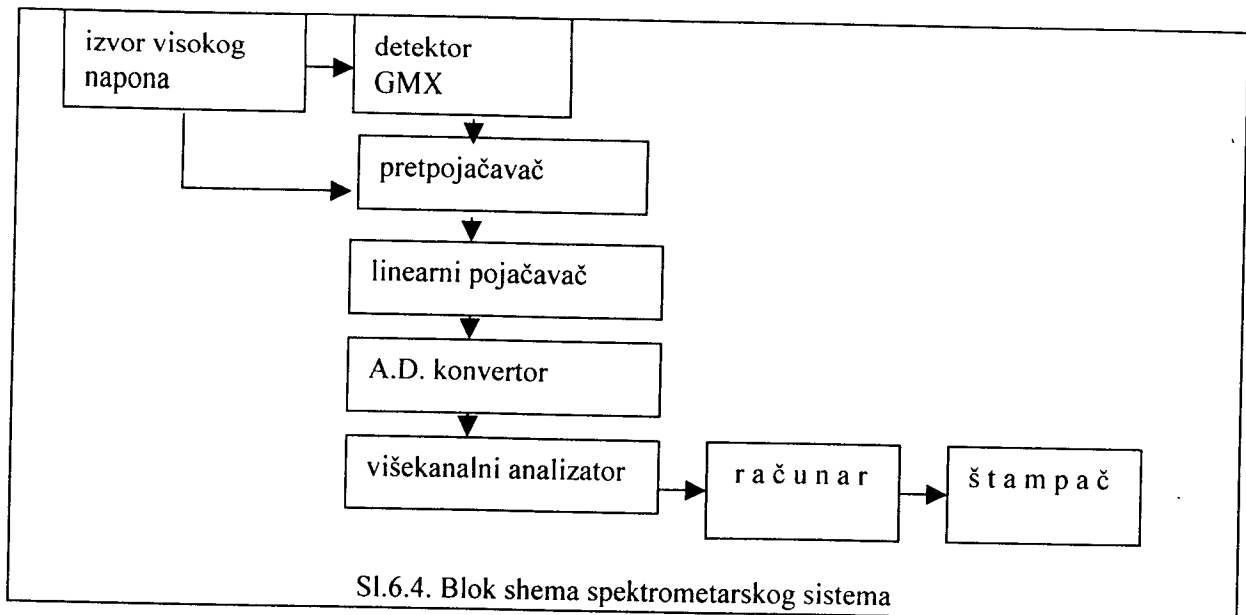


Sl.6.3. Kriostatski sistem HJ

Izvor visokog (do 5 kV), stabilnog napona na koji je detektor priključen treba da obezbedi brzo sakupljanje slobodnih nosilaca naelektrisanja nastalih upadima γ kvanata i spreči njihovu rekombinaciju.

6.1.2. Uređaji za obradu signala u spektrometarskom sistemu

Blok-shema sistema za snimanje i obradu spektara γ -zračenja predstavljena je na sl. 6.4.



Sl.6.4. Blok shema spektrometarskog sistema

Pored detektora γ -zračenja, sistem sadrži sledeće komponente neophodne za obradu signala:

1) Prepojačavač ORTEC model 257 N, sa filterom za visoki napon. Integralna i diferencijalna nelinearnost je $< 0.05\%$ na 90 % dinamičkog opsega prepojačavača, dok je njegova temperaturna nestabilnost $< 50 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$.

Osnovna uloga prepojačavača je da izdvoji signal iz detektora bez značajnog smanjenja postojećeg odnosa signal/šum. Zbog toga je prepojačavač lociran uz sam detektor.

2) Pojačavač CANBERRA model 2021, čija je integralna nelinearnost $< 0.05\%$ za ceo dinamički opseg pri konstanti integracije od 2 μs . Podešena konstanta integracije iznosi 6 μs . Grubi stepen pojačanja je 100, a fini stepen pojačanja 0.3. Promena pojačanja zbog temperaturskih varijacija je $< 75 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$.

Primarni zadatak pojačavača je da uveća amplitudu prepojačavačkog izlaznog impulsa sa milivoltskog opsega na 0.1-10V opseg. Ovaj uređaj mora raditi u takvom režimu da daje linearno pojačanje, tj. povećava amplitudu impulsa srazmerno prvobitnoj visini. U našem slučaju, usled dotrajalosti elektronskih komponenti, došlo je pojave relativno velike nelinearnosti koja je morala biti uzeta u obzir nelinearnom energijskom kalibracijom.

3) Analogno-digitalni konvertor CANBERRA-model 8075, sa maksimalnim opsegom konverzije od 8192 kanala. On meri maksimum amplitude analognog ulaznog impulsa i pretvara izmerenu vrednost u digitalni broj.

4) Višekanalni analizator CANBERRA-model 35 PLUS sa 8192 kanala. Memorijski prostor je podeljen na dva dela sa po 4096 kanala, što omogućava rad dvaju detektora.

Ovaj uređaj razvrstava, sortira brojeve koje smo dobili za amplitude signala (proporcionalnih energijama upadnih fotona) po odgovarajućim adresama, odnosno kanalima. Širina kanala odgovara nekom energetsom intervalu ΔE , a svakom kanalu korespondira određena energija. Spektar koji daje višekanalni analizator predstavlja onda zavisnost broja impulsa unutar određenog kanala u funkciji položaja kanala.

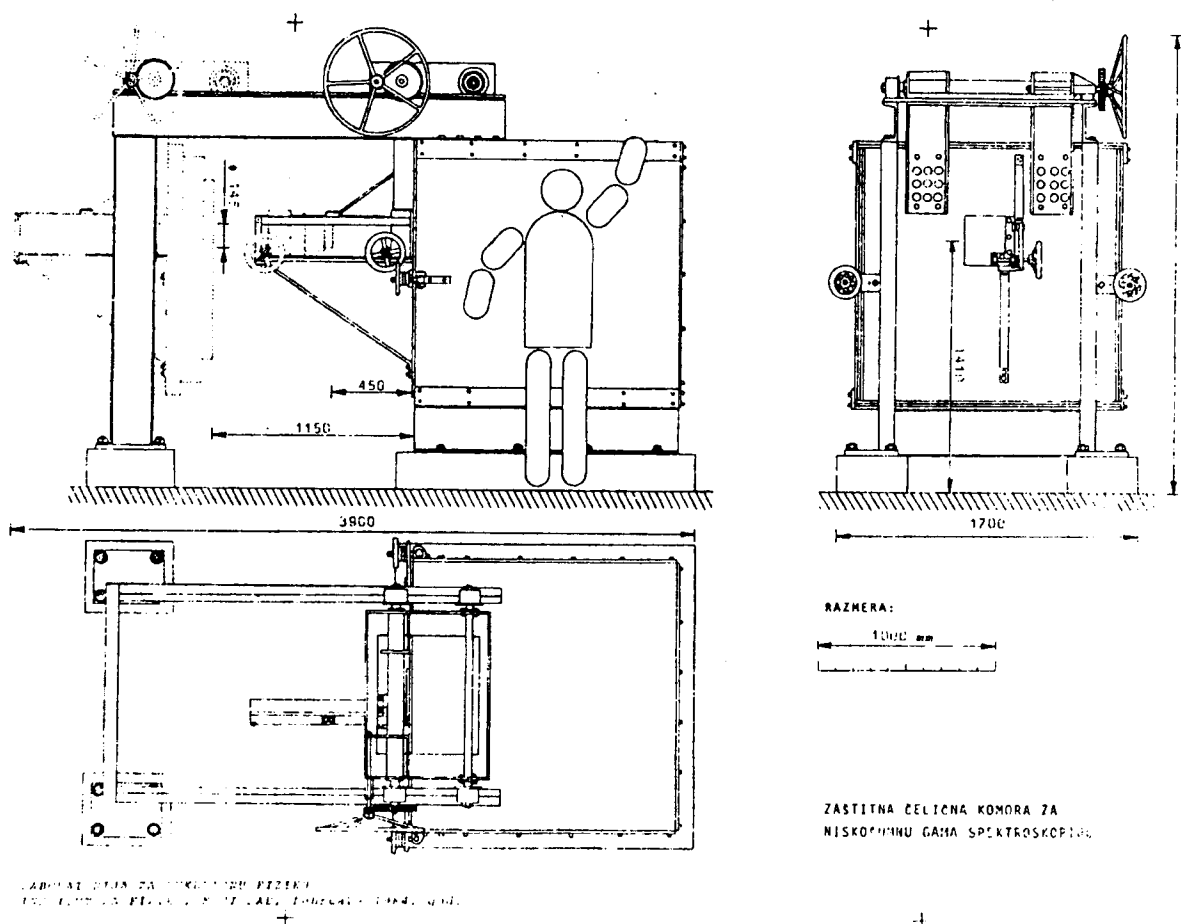
5) Računar PC kompatibilni računar, sa operativnim sistemom MSDOS.

On omogućava vizuelizaciju spektra, njegovu obradu i čuvanje.

6.1.3. Niskofonska zaštita

Niska radioaktivnost uzoraka iz prirodne sredine ne bi mogla biti registrovana na fonu okružujućeg ambijenta bez obezbeđenja uslova niskošumnog merenja [Bikit84], [Bikit98], [Bikit98a]. Ovde je opisana niskofonska zaštita za γ -spektrometre koja postoji u Institutu za fiziku u Novom Sadu, a odigrala je značajnu ulogu i prilikom merenja koja su predmet ovog diplomskog rada.

Kao najpogodniji zaštitni materijal izabrano je Fe liveno pre drugog svetskog rata koje ne sadrži dugoživeće fisione produkte poreklom iz vazdušnih nuklearnih eksplozija. Zidovi zaštitne komore su sastavljeni od limova debljine oko 1 cm izrađenih od pomenutog Fe. Limene ploče su isečene iz oplata starog švedskog broda "Orijent II". Komora (sl. 6.5) ima oblik kocke sa bočnim pomičnim vratima. Debljina zidova komore iznosi 25 cm, a korisna zapremina 1 m^3 , te se u nju može smestiti detektor sa Djuarovim sudom. Na pomičnim vratima se nalaze kružna vrata ($\phi = 15 \text{ cm}$) za postavljanje uzoraka za merenje. Radi smanjenja uticaja zračenja podloge, cela komora je uzdignuta sa betonskog postolja na visinu od 0.5 m pomoću nosača izrađenih od starih železničkih šina. Na zidovima komore postoje samo otvori za dolivanje tečnog azota u Djuarov sud ($\phi = 20 \text{ mm}$), za vođenje električnih kablova do detektora ($\phi = 15 \text{ mm}$) i dva otvora od $\phi = 20 \text{ mm}$ za prinudnu ventilaciju.



Sl. 6.5. Konstrukciona shema niskofonske zaštitne komore

Za smeštaj komore je izabrana takva lokacija u zgradi Instituta za fiziku koja je udaljena od svih izvora zračenja i u kojoj nije radeno sa radioaktivnim izotopima. Rezultati merenja fona u komori pokazali su da je dobijena kvalitetna univerzalna spoljašnja zaštita za bilo koji poluprovodnički spektrometar. Međutim, glavna prednost opisane niskošumne zaštite je u tome što omogućuje dalje usavršavanje i dodatnu redukciju fona.

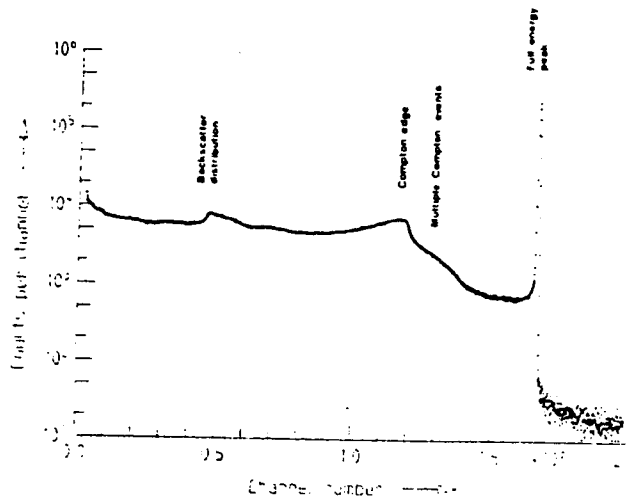
6.2. PROCEDURA MERENJA

6.2.1. Kvalitativna i kvantitativna γ -spektrometrijska analiza

Gama zraci nastaju pri deeksitaciji pobuđenih nuklearnih stanja u jezgama atoma. Popunjavanje stanja, odnosno njihovo pobuđivanje može se ostvariti putem nuklearnih reakcija i radioaktivnim raspadom jezgra (α -raspad, β -raspad). Tokom ovih procesa dolazi do promene rednog broja jezgra, pri čemu se početno i krajnje jezgro nazivaju jezgro predak i jezgro potomak. Obično se kao izvor γ -zraka uzima ime pretka iako najčešće γ -zraci nastaju iz prelaza između različitih stanja u potomku. Emisijom γ -zraka jezgro potomka dospeva u osnovno stanje koje može biti stabilno ili podložno daljem raspadu.

Cilj gama-spektroskopskog merenja je određivanje energije i broja fotona koga emituje izvor. Ove informacije se koriste da se identifikuju radionuklidi prisutni u izvoru i da se odrede njihove aktivnosti.

Originalni gama spektar nekog radioaktivnog izvora ima diskretan karakter. Istaknuta komponenta spektra odbrojanih signala koji je dobijen pomoću detektora i elektronskih uređaja je vrh totalne apsorpcije (vrh pune energije). On nastaje kada upadni γ kvant svu svoju energiju ostavi u detektoru. Vrhovi potpune apsorpcije mogu nekada činiti samo mali deo ukupnog odbroja, ali upravo oni daju korisnu informaciju. Ostatak otpada na spektralni kontinuum čije je prisustvo nepoželjno, međutim ne možemo ga izbeći. Na sl.6.6 prikazan je jednostavan γ spektar ^{137}Cs , koji emituje samo jednu liniju.



Sl. 6.6. Spektar izvora ^{137}Cs .

Fotoelektrični efekat predstavlja neophodan uslov za nastanak vrha pune energije i dok on prevladuje na niskim energijama, Komptonov efekat je najčešći proces u Ge u energijskom intervalu od 150 keV do 9 MeV. Oni komptoni elektroni čija se energija apsorbuje u detektoru doprinose kontinualnoj raspodeli koja se proteže od nulte energije do energije

$$E_C = \frac{E}{1 + \frac{m_0 c^2}{2E}},$$

gde je E energija primarnog fotona, a $m_0 c^2$ energija mirovanja elektrona. Inače, kada razmatramo γ zrake neke određene energije u spektru, razumno je definisati spektralni fon kao spektar koji bi se dobio kada bi bilo prisutno svo zračenje izuzev γ zraka date energije. To bi uključilo efekte γ zraka

viših energija kao i fon okoline. No u spektralnoj analizi uobičajeno je da se u spektralni fon uključi još više efekata, naime sve što ne pripada "vrhu". Ovde to nazivamo "kontinuum".

Na osnovu položaja vrha pune energije utvrđujemo o kojoj liniji γ spektra je reč, tj. o kojem radionuklidu se radi, dok se na osnovu površine vrha (odnosno odbroja signala pod vrhom) određuje aktivnost radionuklida [Slivka00].

6.2.1.1. Oblik vrha pune energije i određivanje površine vrha

Rad programa GAMAR iz programskog paketa za obradu spektra, koji će kasnije biti opisan, zasniva se na nalaženju takve funkcionalne zavisnosti koja može što bolje da opiše oblik vrha totalne apsorpcije, dok se od programa ACTCN očekuje da na osnovu površina ispod vrhova izračuna aktivnost određenog radionuklida. U tom cilju, neophodno je da se podaci u oblasti vrha opišu sa dve analitičke funkcije: jedna da predstavlja spektralni fon (kontinuum), a druga da predstavlja vrh.

Za opisivanje kontinuum ispod vrha koriste se različite analitičke funkcije. Najčešće se takve funkcije sastoje iz dve komponente: prva je neki polinom niskog reda za opisivanje doprinosa od fotona viših energija i koja predstavlja osnovu za ceo region ispod razmatranog vrha, a druga komponenta opisuje skokoviti porast na niskoenergetskoj strani spektra. Izrazi za prvu komponentu variraju od konstante do polinoma trećeg reda. Uopšte uzev, linearna funkcija aproksimira kontinuum dovoljno dobro, osim ako se u razmatranom regionu ne nalazi komptonska ivica. Druga komponenta, skokoviti porast prema nižoj energiji, takođe se opisuje različitim funkcijama. Najjednostavnija ideja je da se koristi prosta stepenasta funkcija sa prekidom na mestu centroide vrha.

U idealnom slučaju vrh pune energije bi se analitički mogao predstaviti Gausovom funkcijom

$$f(x) = Y \exp\left[-\frac{(x-X)^2}{2\sigma^2}\right],$$

gde je Y amplituda, X centroida, a σ poluširina na visini Y/\sqrt{e} . U praksi, vrh ima produžetak, rep na strani niže energije, a moguće i na strani više energije, naročito kod velikih brzina brojanja. Zato se oblik vrha često mora opisivati složenijim funkcijama. Broj parametara koji figuriše u analitičkom obliku takvih funkcija kreće se i do 9 u slučaju gausijana sa dva eksponencijalno opadajuća repa sa obe strane. Metode prilagođavanja funkcija mogu da se prošire i na slučaj multipleta. Tako je za dublet, na primer, funkcija za prilagođavanje suma dve funkcije koje imaju identičan oblik, ali sa različitim vrednostima parametara. Ipak, da bi se korektno analizirali multipleti, obično se vrhovi i kontinuum moraju predstaviti funkcijama koje su bolje aproksimacije merenih oblika nego što su to jednostavni gausijani.

Površina vrha se može uzeti da je integral odgovarajućeg dela analitičke funkcije. Neto površina vrha N , koja je nama od značaja, dobija se tako što se od ukupne površine C oduzme iznos površine B ispod analitičke funkcije koja opisuje kontinuum, tj. $N = C - B$.

Od računarskog programa se očekuje da, pored vrednosti podešavanih parametara, iskaže i njihove varijancije. Tako se npr. nesigurnost površine gausijana može izračunati iz varijancija amplitude Y i širine σ i njihove kovarijancije.

Dakle, ako se odredi neki odbroj pod vrhom (površina) N , tada se dobijeni rezultat navodi kao vrednost sa odgovarajućom granicom poverenja, tj. $N \pm k\sigma_N$, što znači da odbroj leži sa odgovarajućim stepenom poverenja unutar granica $N - k\sigma_N$ i $N + k\sigma_N$. Za nivo poverenja od 90% možemo rezultat predstaviti kao $N \pm 1.645\sigma_N$. Najčešće se koristi jednostruka standardna devijacija σ_N sa nivoom poverenja od 68.3%. Za jednokanalno brojanje i za slučaj kada se vrh i kontinuum određuju iz istog broja kanala je $\sigma_N = \sqrt{N + 2B}$ [Slivka00].

6.2.1.2. Kalibracija energije i efikasnosti

6.2.1.2.1. Energijska kalibracija

Da bi se iz pročitano broj kanala nad kojim leži centroida nekog vrha mogla odrediti energija odgovarajućeg γ fotona, prethodno se vrši energijska kalibracija spektrometarskog sistema. Dakle, cilj energijske kalibracije je definisanje korespondencije između kanala i energije. Upotrebom 4096 kanala (polovina memorije) višekanalnog analizatora za snimanje oblasti od 0 do 2 MeV, dobija se energijska kalibracija od oko 0.5 keV po kanalu.

Energijska kalibracija se izvodi na osnovu spektra izvora koji emituje γ zrake sa precizno poznatim energijama, na taj način što se ove energije povezuju sa izmerenim pozicijama vrhova (tj. rednim brojevima kanala kojima odgovaraju položaji njihovih centroida).

Kalibracioni izvori mogu sadržavati jedan ili više radionuklida, ali je bitno da kalibracione energije prekrivaju ceo interval u kome se koristi spektrometar. Najjednostavniji način da se izvrši primarna energijska kalibracija je snimanje spektra izvora koji se sastoji iz smeše ^{152}Eu i ^{154}Eu . Energije nekih γ kvanata i verovatnoće njihove emisije za ovaj izvor date su u tabeli 6.1.

Tab. 6.1. Karakteristike γ linija za ^{152}Eu (^{154}Eu)

E [keV]	p_γ [%]
121.7758(4)	28.4(6)
244.6923	7.51(15)
344.286(2)	26.6(5)
443.894(13)	2.80(6)
778.920(4)	12.98(25)
867.384(6)	4.21(8)
964.110(12)	14.5(3)
1112.075(6)	13.6(3)
1408.002(7)	20.8(4)

U najjednostavnijem slučaju energija se može predstaviti kao linearna funkcija kanala

$$E(x) = a_1 + a_2x, \quad (1)$$

gde je x redni broj kanala, a E energija. Nekada je dovoljno dobro da se parametri a_1 i a_2 odrede iz samo dva dobro odabrana vrha. Ako ovi vrhovi imaju energije E_1 i E_2 i pozicije na kanalima X_1 i X_2 , tada je

$$E(x) = E_1 + \left[\frac{E_2 - E_1}{X_2 - X_1} \right] (x - X_1). \quad (2)$$

Kod ovako jednostavnog izraza, razlika između $E(x)$ i prave energije će uglavnom zavisiti od odstupanja od linearnosti sistema pojačavač-analizator. Obzirom da su odstupanja najveća na krajevima kanalnog intervala višekanalnog analizatora, najbolje je izbegavati prvih i poslednjih 10% kanalnog intervala. Odstupanja merenih pozicija vrhova poznatih energija γ zraka od vrednosti dobijenih po jedn. (2) kreću se oko ± 0.5 kanala. Za starije sisteme mogu postojati odstupanja izražena i većim brojem kanala. Poboljšanje u energijskoj kalibraciji može se postići korišćenjem više γ linija poznatih energija. Tada se vrednosti parametara a_1 i a_2 mogu dobiti prilagođavanjem metodom najmanjih kvadrata.

Ako se uzme da je energija kvadratna, a ne linearna funkcija kanala, može se opseg odstupanja kalibrisane energije od prave smanjiti za red veličine. Tada je

$$E(x) = a_1 + a_2x + a_3x^2.$$

Vrednosti parametara a_1 , a_2 i a_3 mogu se izračunati iz energija i pozicija samo tri vrha, ali se najčešće one određuju prilagođavanjem funkcije metodom najmanjih kvadrata koristeći skup od 4 i više vrhova. Ulazni podaci za takav postupak su merene pozicije kalibracionih vrhova, njihove

poznate energije i odgovarajuće nesigurnosti. Rezultat ove procedure su vrednosti a_1, a_2 i a_3 i njihova kovarijaciona matrica [Slivka00].

6.2.1.2.2. Kalibracija efikasnosti

Pod eksperimentalnom kalibracijom efikasnosti podrazumevaćemo kalibraciju detektora na efikasnost vrha pune energije ε , pri čemu ova efikasnost predstavlja odnos odbroja $N_{\Delta t}$ pod vrhom (za γ kvante određene energije) u toku izvesnog vremenskog intervala Δt i ukupnog broja γ kvanata $N_{U\Delta t}$ date energije što ih je izvor emitovao u istom intervalu vremena:

$$\varepsilon = \frac{N_{\Delta t}}{N_{U\Delta t}} = \frac{N_{\Delta t}}{A p_{\gamma} \Delta t}.$$

Ovde je A [Bq] srednja aktivnost izvora u toku tog intervala vremena

$$A = \frac{N_{U\Delta t}}{p_{\gamma} \Delta t},$$

a p_{γ} verovatnoća emisije odgovarajućih γ zraka. Uvodeći srednju brzinu brojanja pod vrhom u toku istog intervala vremena R [s^{-1}] relacijom

$$R = \frac{N_{\Delta t}}{\Delta t},$$

dobijamo

$$\varepsilon = \frac{R}{A p_{\gamma}}. \quad (3)$$

Aktivnost kalibracionog izvora je poznata veličina, kao i vrednosti p_{γ} za γ linije koje se koriste prilikom kalibracije efikasnosti, dok se vrednosti R dobijaju merenjem. Na taj način je omogućeno izračunavanje efikasnosti ε za različite (poznate) energije γ zraka koje emituje kalibracioni izvor. Nakon toga konstruiše se kalibraciona kriva efikasnosti koja predstavlja grafik zavisnosti efikasnosti od energije.

Koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorcima iz prirodne sredine imaju male vrednosti te je neophodno da se merenja vrše na voluminoznim, a ne na približno tačkastim uzorcima. Zbog toga se kalibracija efikasnosti detektora ne vrši na osnovu tačkastog kalibracionog izvora, već se to mora učiniti pomoću voluminoznog kalibracionog izvora da bi uslovi pod kojima vršimo merenje na uzorku bili što je moguće sličniji onim uslovima pod kojim je izvršena kalibracija detektora, čime se postiže veća tačnost merenja. Naime, ako se pri stalnom rastojanju izvor-detektor, radioaktivni materijal izvora raspoređuje po nekoj konačnoj zapremini, nasuprot koncentrisanju u tačkasti izvor, opadaće intenzitet γ zraka na mestu izvora. Izračunavanje prostornog ugla pod kojim se vidi detektor, koji određuje upadni intenzitet γ zraka, jednostavno je za tačkasti izvor. Za rasprostranjene izvore izračunavanje efektivnog prostornog ugla se komplikuje time što svaka tačka u izvoru ima drugačiji pogled na detektor i stoga različito doprinosi ukupnom intenzitetu γ zraka.

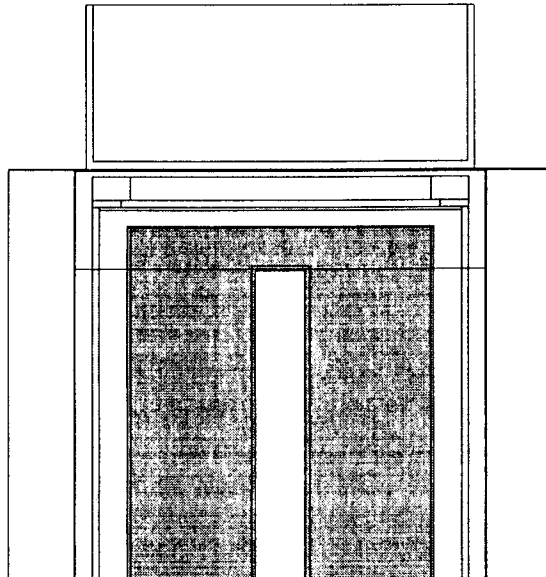
Kod određivanja efikasnosti detektora za uzorke velike zapremine izvestan problem predstavlja atenuacija γ zraka u materijalu uzorka pre no što stigne do detektora [Bikit85]. Ovo je posebno izraženo na niskim energijama γ zraka (<100 keV), jer je koeficijent atenuacije za takve zrake relativno veliki. Standardni postupak kalibracije efikasnosti tada podrazumeva da kalibracioni izvor ima ne samo istu geometriju, već 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 pomoću odgovarajućeg programa koji omogućava da se iz izmerene efikasnosti za kalibracioni izvor cilindrične geometrije i poznatog

sastava, izračuna efikasnost za uzorak cilindrične geometrije bilo kog sastava, ako je poznata (posebno izmerena) zavisnost atenuacionog koeficijenta γ zraka od energije.

Takođe, mora se voditi računa i o određivanju optimalne visine cilindričnog kalibracionog izvora sa fiksiranim poluprečnikom, a to znači i merenog uzorka jer oni moraju biti istih dimenzija. Obzirom da brzina brojanja raste sa masom izvora (tj. njegovom visinom), ali i da efekat samoapsorpcije u rasprostranjenom izvoru dolazi sve više do izražaja sa povećanjem njegove visine, rešenje problema nije očigledno. Standardne visine naših uzoraka navedene su ispod sl. 6.8 .

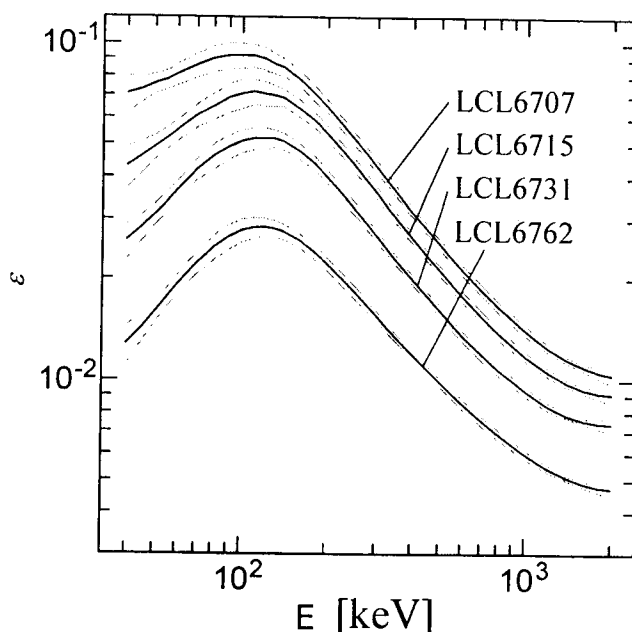
Kalibracioni izvori, kao i mereni uzorci moraju biti što homogenijeg sastava da bi doprinos ukupnoj aktivnosti kalibracionog izvora odnosno uzorka od svih tačaka njihove zapremine bio što ravnomerniji te se i na ovaj način postiže njihova sličnost u smislu ravnomerne prostorne distribucije radioizotopa .

Geometrija voluminoznih uzoraka cilindričnog oblika na detektoru LLB-GMX-HJ korišćena pri merenjima u ovom radu prikazana je na sl. 6.7.



Sl. 6.7. Geometrija cilindričnih uzoraka na detektoru LLB-GMX-HJ

Kalibracija efikasnosti našeg detektora je izvršena pomoću prirodnog fosfata koji sadrži uranijum i za koji postoji opravdana pretpostavka da su svi članovi uranijumovog niza u ravnoteži. Linije koje se emituju iz ovakvog izvora pokrivaju, naravno, ceo energijski opseg od interesa. Naime, na jednom drugom detektoru, ranije kalibrisanom standardnim kalibracionim tačkastim izvorima, izvršena su vrlo dugotrajna merenja aktivnosti uzorka fosfata približno tačkaste geometrije, pri čemu je određena koncentracija aktivnosti [Bq/kg] u tom fosfatu. Zatim je na osnovu tog podatka izvršena kalibracija efikasnosti našeg detektora za voluminozne cilindrične izvore izrađene od istog fosfata i to za 4 različite visine izvora. Rezultat takve kalibracije predstavljen je na sl.6.8. Pri konstruisanju ovih krivih iskorištene su i tačke dobijene pomoću cilindričnih izvora iste geometrije koji su sadržavali KCl. Uzajamni odnosi obijelih vrednosti efikasnosti proverene su pomoću programa za proračun uticaja geometrije na efikasnost [Krstonošić00] i nađeno je dobro slaganje. Relativna greška efikasnosti određene sa neke od ovih kalibracionih krivih iznosi 5-7%.



Sl. 6.8. Efikasnost ε detektora LLB-GMX-HJ u funkciji energije E za cilindrične uzorke prečnika 67 mm i raznih visina: LCL6707 – 7 mm, LCL6715 – 15 mm, LCL6731 – 31 mm, LCL6762 – 62 mm

Kada je jednom konstruisana kriva efikasnosti, potrebno je izvršiti interpolaciju da bi se dobile vrednosti efikasnosti neophodne za izračunavanje aktivnosti određenog radionuklida u uzorku iz brzina brojanja pod vrhovima ukupne energije, rešavanjem jednačine (3) po A .

Poznavajući aktivnost A radionuklida (broj raspada u jedinici vremena), uvek je moguće izračunati broj prisutnih njegovih jezgara N ako znamo konstantu raspada λ ili period poluraspada $T_{1/2}$ tog izotopa :

$$A = N \lambda = N \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \Rightarrow N = \frac{A}{\lambda} = \frac{A T_{1/2}}{\ln 2}.$$

6.2.1.3. Programski paket za obradu spektara

Ovaj paket programa omogućava pouzdanu i brzu kvalitativnu i kvantitativnu analizu gama spektara. To je izuzetno važno u onim slučajevima kada u spektrima postoji veliki broj vrhova (što predstavlja nepogodnost kod njihovog vizuelnog lociranja), ili kada mora da se obradi veliki broj spektara. Razvijen je u Laboratoriji za nuklearnu fiziku IF za operativni sistem MS-DOS na IBM PC ili kompatibilnim računarima, korišćenjem programskog jezika Pascal. U osnovi ovog programa leže isti algoritmi koje se koriste u komercijalnim programskim paketima zasnovanim na programu SAMPO [Routti 69]. Međutim, program je više prilagođen analizi spektara iz izvora niskih aktivnosti, sa manje-više unapred poznatim sortimanom radionuklida prisutnih u uzorku, nego što je to kod komercijalnih programa, koji su više usmereni na automatsku identifikaciju radionuklida.

Ovaj paket programa se sastoji iz tri komponente :

- 1) *Program "GAMAR"* - uloga mu je fitovanje vrhova totalne apsorpcije prisutnih u spektru.
- 2) *Program "ACTCN"* - identifikuje prisutne vrhove i omogućava izračunavanje koncentracije aktivnosti radionuklida koji se nalaze u uzorku.
- 3) *Program "RESPRT"* koji služi za pregledno štampanje rezultata merenja.

Rad programa GAMAR nije prvenstveno baziran na automatskom traženju vrhova u snimljenim spektrima, kao većina komercijalnih programa, iako on vrši i tu funkciju, već na tabeli unapred odabranih gama linija radionuklida koji se očekuju u analiziranom uzorku. Većina podataka i tabela

neophodnih za rad ovog programa može da se napravi i rediguje u bilo kom programu za redigovanje tekstualnih fajlova nezavisno od samog programa za analizu spektara.

Program najpre učitava jednu ranije pripremljenu opširnu biblioteku linija koje se uopšte mogu pojaviti u spektru uzorka. Ova tabela sadrži energije i intenzitete linija i poluživote radionuklida γ emitera prirodnih i veštačkih radionuklida koji se nalaze u okruženju, kao i onih koji bi se mogli pojaviti usled nuklearnih akcidenata. Redovi u tabeli uređeni su po rastućim energijama. Ovakve tabele unose se i rediguju kao tekstualni fajlovi (*.LIB), a zatim se pomoću posebnog programa LIB2LBC od njih dobija lista niski u obliku fajla sa nastavkom *.LBC, koja je pogodnija za brzo pretraživanje. U Tab.6.2. prikazano je zaglavlje i prvih nekoliko linija tabele koja je korišćena u ovom radu.

Tab. 6.2. Zaglavlje i početak biblioteke ENVIRON1.LBC gama linija koje se mogu očekivati u uzorcima iz prirode

```
ENVIRON1.LIB 93.01.09.
E. Browne, R. B. Firestone,
Table of Radioactive Isotopes, John Wiley & Sons, New York, 1986.
U--238: 30 keV<E p_\g>1E-3;
U--235: 30 keV<E p_\g>2.18E-3; A(235)/A(238)=0.04605(8);
Th-232: 30 keV<E p_\g>1E-3;
Tb-160: 30 keV<E<2000 keV p_\g>100E-3;
Sn-121m:30 keV<E<2000 keV p_\g>10E-3;
Ce-141, I--129, Am-241, Am-243: 30 keV<E<2000 keV p_\g>50E-3;
Ce-144, Se-75, Sb-125, Be-7, Ru-103, Ru-106, Zr-95, Nb-95, Co-58, Ag-110m,
Co-60, K-40, Sb-124, Eu-155: 40 keV<E<2000 keV p_\g>50E-3;
Cs-134: 40 keV<E<2000 keV p_\g>20E-3;
Co-56: 40 keV<E<2000 keV p_\g>670E-3;
@T
```

& E_\g~(keV)	nuclide/daughter	p_\g~(E-3)	T	~
& 35.550(5)	Ce-141~/PrK\ a2	50.1(18)	32.50(1)	d
& 36.026(5)	Ce-141~/PrK\ a1	91(3)	32.50(1)	d
& 37.134(8)	Sn-121m	18.5(5)	55(5)	y
& 39.5710(23)	I--129	75(2)	15.7(4)E6	y
& 39.846(5)	Th-232~/Bi-212	11.00(25)	14.05(6)E9	y
& 42.309(5)	Eu-155~/GdK\ a2	69(4)	4.96(1)	y
& 42.996(5)	Eu-155~/GdK\ a1	124(7)	4.96(1)	y
& 43.537(3)	Am-243	51.0(22)	7380(40)	y
& 45.998(5)	Tb-160~/DyK\ a1	107(5)	72.3(2)	d
& 46.52(2)	U--238~/Pb-210	40.5(5)	4.468(5)E9	y
& 50.14(4)	U--235~/Th-227	84(3)	0.7037(11)E9	y
& 53.172(18)	U--238~/Pb-214	11.0(5)	4.468(5)E9	y
& 53.23(3)	U--238~/U--234	1.19(10)	4.468(5)E9	y
& 57.81(5)	Th-232~/Ac-228	5.25(14)	14.05(6)E9	y

Sledeći korak je učitavanje liste linija koje će poslužiti za analizu radionuklida u konkretnom uzorku ili seriji uzoraka. Ovakve tabele su tekstualni fajlovi i sadrže za svaku γ liniju po jedan red u kome je navedena energija, naziv radionuklida, verovatnoća γ raspada p_γ i poluživot radionuklida $T_{1/2}$. Verovatnoće p_γ za članove prirodnih radioaktivnih nizova su navedene pod pretpostavkom da su nizovi u redioaktivnoj ravnoteži. U ovom radu služili smo se listom ENV2-2.GRL, koja je u celosti prikazana u Tab. 6.3. Specifičnosti koje se pojavljuju u ovoj listi, kao što je linija na 185.9 keV, biće jasne iz diskusije u odeljku o gama spektrometrijskoj analizi uranijuma u zemljištu.

Tab. 6.3. Lista ENV2-2.GRL sa spiskom γ linija koje su analizirane u uzorcima zemlje

ENV8.GRL 92.03.17.

@E@B@4Gamma-ray list of environmental radionuclides.

@ip@,g of the compound line at 186 keV calculated to give the activity of U&-238/Ra-226, equilibrium (EQL) assumed.

@! No	@iE@, \$g& (keV)	nucl.de/daughter	@ip@, \$g	&&@iT
@! 1	46.52(2)	U~-238~/Pb-210	0.0405(5)	4.468(5)E9 y
@! 2	63.288(18)	U~-238~/Th-234	0.038(1)	4.468(5)E9 y
@! 3	129.03(7)	Th-232~/Ac-228	0.029(9)	14.05(6)E9 y
@! 4	131.50(6)	Th-232~/Th-228	0.00128(14)	14.05(6)E9 y
@! 5	185.9(2)	U~-238~/Ra-226/ (EQL)	0.057(3)	4.468(5)E9 y
@! 6	209.39(7)	Th-232~/Ac-228	0.031(8)	14.05(6)E9 y
@! 7	235.97(4)	U~-235~/Th-227	0.110(6)	0.7037(11)E9 y
@! 8	238.578(4)	Th-232~/Pb-212	0.436(11)	14.05(6)E9 y
@! 9	240.76(10)	Th-232~/Ra-224	0.039(11)	14.05(6)E9 y
@! 10	241.92(3)	U~-238~/Pb-214	0.0746(15)	4.468(5)E9 y
@! 11	270.26(8)	Th-232~/Ac-228	0.038(11)	14.05(6)E9 y
@! 12	295.091(24)	U~-238~/Pb-214	0.192(4)	4.468(5)E9 y
@! 13	351.87(4)	U~-238~/Pb-214	0.371(7)	4.468(5)E9 y
@! 14	583.022(22)	Th-232~/Tl-208	0.309(11)	14.05(6)E9 y
@! 15	609.311(13)	U~-238~/Bi-214	0.461(5)	4.468(5)E9 y
@! 16	661.660(3)	Cs-137	0.8521(1)	30.0(2) y
@! 17	665.422(17)	U~-238~/Bi-214	0.0156(5)	4.468(5)E9 y
@! 18	794.79(11)	Th-232~/Ac-228	0.046(3)	14.05(6)E9 y
@! 19	860.30(6)	Th-232~/Tl-208	0.0431(14)	14.05(6)E9 y
@! 20	911.16(3)	Th-232~/Ac-228	0.29(3)	14.05(6)E9 y
@! 21	964.07(3)	U~-238~/Pb-214	0.00383(20)	4.468(5)E9 y
@! 22	964.64(8)	Th-232~/Ac-228	0.058(5)	14.05(6)E9 y
@! 23	968.97(5)	Th-232~/Ac-228	0.174(17)	14.05(6)E9 y
@! 24	1001.00(3)	U~-238~/Pa-234	0.0065(5)	4.468(5)E9 y
@! 25	1120.273(18)	U~-238~/Bi-214	0.150(3)	4.468(5)E9 y
@! 26	1238.107(25)	U~-238~/Bi-214	0.0592(12)	4.468(5)E9 y
@! 27	1460.832(10)	K~-40	0.1067(10)	1.277(8)E9 y
@! 28	1764.490(22)	U~-238~/Bi-214	0.159(3)	4.468(5)E9 y

@T

Nakon toga program vrši učitavanje energijske kalibracije sačuvane u obliku binarnog fajla sa nastavkom *.ECP, u kome je sadržana zavisnost energije od kanala i obrnuto (data preko parametara krive sa njihovim mernim nesigurnostima). Takva zavisnost nije prosto linearna, nego je dozvoljeno odstupanje od linearnosti. Ukoliko nisu menjani uslovi pojačanja, ova kalibracija predstavlja ustvari kalibraciju poslednjeg prethodno analiziranog spektra. Kasnije će program iz prepoznatih linija u novom spektru načiniti precizniju autokalibraciju, koja će opet poslužiti kao polazna za sledeći spektar itd. Na ovaj način se izbegava procedura koja zahteva određeno vreme za kompletnu novu energijsku kalibraciju pomoću kalibracionog izvora (¹⁵²Eu). Naime, rad elektronskih uređaja je dovoljno stabilan, tako da se ovo ne čini. Ipak povremeno se vrši snimanje spektra okružujućeg fona, u kojem su uvek prisutne brojne γ linije poznatih energija na osnovu kojih se uvek može izvršiti kalibracija, koja onda predstavlja početni korak energijske kalibracija za narednu seriju merenja.

U slučaju promene pojačanja linearnog pojačavača ili drugih parametara merenja, energijska kalibracija se može uneti i pomoću pripremljenog tekstualnog fajla (*.ECF), koji mora da sadrži bar 5 parova vrednosti energija-kanal, poredanih po rastućoj energiji.

U sledećoj fazi program učitava binarni fajl sa nastavkom *.SCP u kome se nalaze vrednosti parametara koji opisuju zavisnost oblika linije od energije. To je, ustvari, kalibracija oblika vrha. Ova kalibracija je stabilna, a izvršena je pomoću kalibracionog izvora čiji spektar ima dobro definisane, dobro odvojene vrhove.

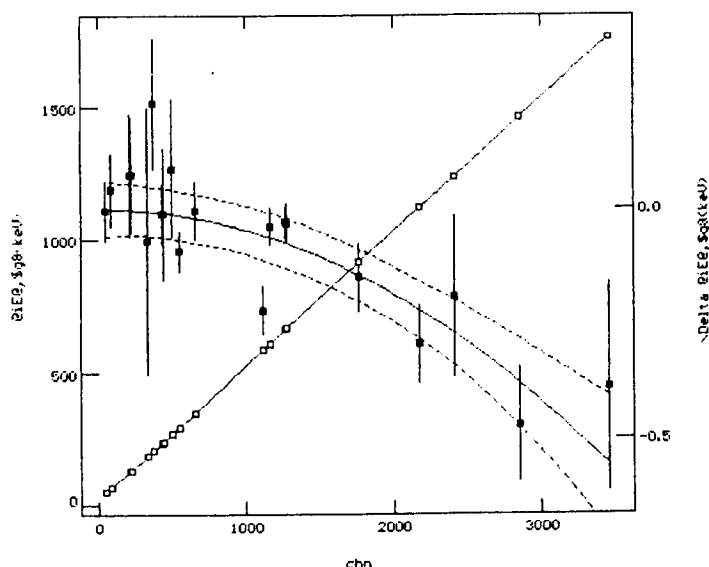
Koristeći energijsku kalibraciju prethodnog spektra, program izračunava pozicije u kanalima linija upisanih u odabranu listu (*.GRL).

Program zatim očekuje da navedemo koji spektar želimo da obradimo. Spektri se mogu obradivati interaktivno, jedan, po jedan, sa mogućnošću intervencije u različitim fazama fitovanja, ili, kada se radi o serijama sličnih spektara, potpuno automatski, sve dok u odgovarajućem katalogu fajlova (directory) ima neobrađenih spektara koji odgovaraju na početku unetoj masci za imena

spektara (*.SPC). U programu se spektar razbija na interesne regione, delove spektra u kojima postoje linije koje prema unesenoj listi treba da se obrađuju. Linije su često blizu jedna druge i tada moraju u proceduru fitovanja da uđu kao multiplieti, tj. njihovi parametri moraju da se fituju istovremeno. Program dozvoljava najviše 7 linija u okviru multipleta. Funkcija koja se fituje sastoji se od kontinuuma, koji može biti linearan ili paraboličan (2, odn. 3 parametra), i od najviše 7 linija, od kojih je svaka opisana svojom pozicijom, amplitudom, širinom i sa još po 3 parametra za opis oblika linije, što bi zahtevalo maksimalno 46 parametara. Istovremeno fitovanje tolikog broja parametara je nefunkcionalno i nepotrebno, jer se mnogi od ovih parametara mogu fiksirati ili međusobno povezati, tako da se zapravo istovremeno fituje najviše 16 parametara. Tako je, na primer fitovanje parametara za oblik linije (osim širine) dozvoljeno samo kada je u regionu o interesa samo jedna linija (singlet). U automatskom modu, koji smo ovde najviše koristili, pored parametara za kontinuum, fituju se samo sledeći parametri: parametri kontinuuma, zajednički pomeraj svih linija multipleta u odnosu na vrednost energije proračunate na osnovu unete liste, pojedinačne amplitude linija i eventualno faktor zajedničkog proširenja linija.

Da bi se dobile približne početne vrednosti parametara za poziciju, visinu i oblik vrhova, program najpre, koristeći energijsku kalibraciju i zavisnost parametara oblika linije od energije, napravi približnu procenu parametara linearnim MNK sa pojednostavljenim oblikom linije. U drugoj etapi koristi se iterativni metod nelinearnog fitovanja pravog oblika vrha, pri čemu se stremljenje minimalnoj vrednosti za χ^2 . Upravo prema vrednosti ove veličine možemo da zaključimo da li analitička funkcija dovoljno dobro opisuje vrh. Kada je postignut minimum, sve dobijene vrednosti parametara program zapisuje u jedan fajl sa nastavkom *.PKG, koji je u obliku tekstualne tabele, a zatim vrši autokalibraciju za konkretni obrađivani spektar, tj. odredi parametre kalibracione krive na osnovu stvarnih položaja prisutnih vrhova. U prvoj fazi uzima se linearna zavisnost energije od kanala, a u drugoj fazi nelinearna (kvadratna) zavisnost. Rezultat ovoga je izgled energijske kalibracije i odstupanje od linearnosti prikazano na sl. 6.9. Parametri te kalibracije se snimaju u tekstualnom obliku

01.03.13.10:23:39 GAMAR2.EKE 01.03.17.19:06 1 PRINTING



LJJB02U4.SPC 01.03.13.13:03 LB010825.ECP C:\J-GAM\Dat\GRL\ENV02-2.SPL 00.03.09.12:49

Sl. 6.9. Energijska kalibracija spektrometra, direktno – otvoreni kvadrati, leva ordinata; odstupanje od linearnosti – ispunjeni kvadrati, desna ordinata

(* .ECF) i u binarnom obliku (*.ECP), a poslužiće kao preliminarna za sledeći spektar. Za dalju obradu

trenutno analiziranog spektra koristimo dobijenu autokalibraciju, pri čemu se proces fitovanja vrhova ponavlja vrlo slično predašnjem. Posle izvršenog refitovanja opet dobijamo tabelu sa kompletnim podacima o vrhovima zapisanu u tekstualnom obliku u fajlu sa nastavkom *.PKR. Primer ovakvog rezultata programa GAMAR dat je u Tab. 6.4.

Tab. 6.4. Primer rezultata programa GAMAR, liste fitovanih vrhova (*.PKR) u jednom od spektara

```

LVJ22.PKR written 00.06.05.09:20:53 by GAMAR2.EXE 00.01.17.12:50
Spectrum file LVJ22.SPC 00.06.01.19:59
Energy calibration fit based on LVJ22.ECF 00.06.01.19:59
Shape calibration fit based on C:\JGAM\DAT\LCP.SCF 99.12.14.09:56
Peak list read from C:\JGAM\DAT\ENV82-2.GRL 00.03.09.12:49
@T !
=====
No   chn   SE \gS~ (keV)   a~ (c/ks)   fit   FWHM~ (keV)   broadening   lt~ (keV)   ht~ (keV)   step
=====
 1   55.97(9)   46.53(5)   17.3(11)   M   0.856(11)   1.000(13)   1.01(5)   2.03(24)   1.00(5)E-03
 2   89.00(7)   63.24(4)   37.4(13)   M   0.873(10)   1.000(12)   1.02(5)   2.03(24)   1.00(5)E-03
 3   218.96(17)   129.00(9)   8.8(9)   M   0.938(8)   1.000(8)   1.03(4)   2.04(22)   1.00(5)E-03
 4   223.84(16)   131.47(8)   2.2(8)   M   0.940(8)   1.000(8)   1.03(4)   2.04(22)   1.00(5)E-03
 5   331.4(4)   155.86(21)   23.9(13)   B   1.18(7)   1.19(7)   1.04(4)   2.04(20)   1.00(5)E-03
 6   377.42(17)   209.16(8)   10.5(9)   M   1.016(5)   1.000(5)   1.05(4)   2.04(19)   1.00(5)E-03
 7   430.42(9)   235.96(5)   2.9(7)   M   1.041(5)   1.000(4)   1.06(4)   2.04(19)   1.00(5)E-03
 8   435.58(4)   235.589(23)   110.3(19)   M   1.044(5)   1.000(4)   1.06(4)   2.04(19)   1.00(5)E-03
 9   439.89(20)   240.77(10)   10.6(8)   M   1.046(5)   1.000(4)   1.06(4)   2.04(19)   1.00(5)E-03
10   442.18(7)   241.93(4)   18.3(9)   M   1.047(4)   1.000(4)   1.06(4)   2.04(19)   1.00(5)E-03
11   498.00(18)   270.17(9)   8.4(7)   M   1.074(4)   1.000(4)   1.06(3)   2.04(18)   1.00(5)E-03
12   547.40(6)   295.16(4)   33.5(10)   M   1.097(4)   1.000(3)   1.07(3)   2.05(17)   1.00(5)E-03
13   659.51(9)   351.66(5)   55.0(15)   B   1.178(29)   1.024(25)   1.053(29)   2.05(16)   1.00(5)E-03
14   1116.71(7)   593.16(4)   32.4(9)   M   1.358(4)   1.0000(28)   1.136(20)   2.06(15)   1.00(5)E-03
15   1166.33(6)   609.27(3)   38.9(11)   M   1.380(4)   1.0000(29)   1.142(20)   2.06(16)   1.00(5)E-03
16   1271.82(5)   661.62(3)   89.4(21)   B   1.418(25)   0.995(18)   1.155(20)   2.07(17)   1.00(5)E-03
17   1279.25(6)   665.38(4)   1.0(4)   B   1.421(25)   0.995(18)   1.156(20)   2.07(17)   1.00(5)E-03
18   1535.8(4)   795.13(8)   3.8(6)   B   1.64(25)   1.07(16)   1.156(22)   2.07(20)   1.00(5)E-03
19   1664.98(21)   860.49(11)   3.6(4)   M   1.589(5)   1.000(3)   1.201(25)   2.08(23)   1.00(5)E-03
20   1765.20(11)   911.16(6)   19.9(9)   B   1.57(6)   0.96(4)   1.213(27)   2.08(23)   1.00(5)E-03
21   1869.79(11)   964.06(6)   0.3(7)   M   1.670(6)   1.000(4)   1.23(3)   2.08(25)   1.00(5)E-03
22   1870.91(18)   964.63(10)   3.8(8)   M   1.671(6)   1.000(4)   1.23(3)   2.08(25)   1.00(5)E-03
23   1879.47(14)   968.96(7)   11.7(6)   M   1.674(6)   1.000(4)   1.23(3)   2.08(25)   1.00(5)E-03
24   1942.80(29)   1009.99(15)   2.1(3)   M   1.699(7)   1.000(4)   1.23(3)   2.09(26)   1.00(5)E-03
25   2178.71(13)   1120.29(7)   8.8(6)   M   1.788(9)   1.000(5)   1.26(4)   2.1(3)   1.00(5)E-03
26   2411.80(28)   1258.17(14)   2.9(4)   M   1.872(13)   1.000(7)   1.29(5)   2.1(4)   1.00(5)E-03
27   2852.32(16)   1460.92(10)   84.3(22)   B   2.07(4)   1.025(17)   1.34(6)   2.1(4)   1.00(5)E-03
28   3452.3(3)   1764.27(20)   7.6(6)   B   2.42(17)   1.10(8)   1.4(3)   2.1(6)   1.00(5)E-03
=====
4096 channels, measured for 44.472 ks
Integral count rate = 5.627(11) c/s
Shift: average=0.00(1) keV   max=0.34(21) keV at 795.13(16) keV
Line broadening: average=1.000(19)   Max=1.19(7) at 185.86(21) keV
Max FWHM = 2.42(17) keV at 1764.27(20) keV
=====
LVJ22.PKR closed 00.06.05.09:20:53

```

Kolone ove tabele sadrže redom: redni broj linije, kanal položaja linije u spektru, energiju linije u spektru, brzinu brojanja dobijenu fitovanjem, oznaku za tip fitovanja, a ostale kolone daju parametre oblika linije: širinu, oblik repa na niskoenergijskoj strani, na visokoenergijskoj strani i skok.

Naposletku, program automatski pretražuje spektar nalazeći sve prisutne vrhove, dakle i one kojih nema u tabeli unapred odabranih vrhova, zatim pristupa njihovom fitovanju, nakon čega se formira tabela podataka o svim nađenim vrhovima i zapisuje se u obliku tekstualnog fajla sa nastavkom *.PKF, koji je po strukturi veoma sličan *.PKR. Time je završen rad programa GAMAR.

Za svaki uzorak sada postoje sledeći fajlovi:

- 1) *. SPC, tekstualni u kome se čuva snimljeni spektar u obliku odbroja po kanalima,
- 2) *. ECF, binarni, koji sadrži parametre energijske kalibracije (konačne za ispitivani spektar),
- 3) *. PKR, tekstualni, koji sadrži podatke o parametrima vrhova koji su na početku učitani iz liste unapred odabranih vrhova (*.GRL),
- 4) *. PKF, tekstualni, koji sadrži podatke o parametrima vrhova nađenih automatskim pretraživanjem spektra.

Fajlovi *.ECF i *.PKG nisu više potrebni, pa se mogu izbrisati. Svi ovi fajlovi imaju ime koje se poklapa sa kodnim imenom po kojim je snimljen spektar, a prema sadržaju različite nastavke. Ceo postupak se mora ponoviti za spektar u kome je snimljen fon.

Dosadašnja obrada spektara dala nam je kao rezultat samo brzine brojanja za pojedine linije u snimljenim spektrima (*.PKR, *.PKF). Program koji će iz ovih brzina brojanja odrediti koncentracije aktivnosti pojedinih radionuklida u uzorku zove se ACTCN.

U tu svrhu potrebno je da napravimo *.SMP fajl u kome će se nalaziti neophodni podaci o uzorku čiji spektar obrađujemo. To je opet tekstualni fajl, koji se rediguje kao formular. Primer takvog teksta dat je u tab.6.5.

Tab. 6.5. Primer SMP fajla za jedan od izmerenih uzoraka

```

=====
JOB                               :VJ
SAMPLE DESCRIPTION                 :zemlja, rejon 1 uzorak 7
SAMPLE QUANTITY/UNIT              :0.1370 kg
SAMPLING DATE/TIME                :00.05.31.12:00:00
MEASUREMENT END DATE/TIME        :00.06.01.20:00:00
GEOMETRY CODE/DIMENSIONS          :B 31.0
EFFICIENCY FILENAME               :LCL6731.EFF
BACKGROUND REPORT FILENAME        :\SPC\LB000331.PKR
=====

```

Pored linija za identifikaciju o kom poslu se radi i o tipu uzorka, ovde se unosi količina uzorka, datum i vreme uzorkovanja, datum i vreme završetka merenja, kod za opis geometrije merenja, naziv fajla u kome se nalazi tabela za efikasnost za dati tip uzoraka i datu geometriju (*.EFF) i, konačno, ime fajla u kome je lista fitovanih vrhova (*.PKR) u odgovarajućem spektru fona.

Dakle, za rad programa ACTCN potrebno je za dati uzorak da budu unapred pripremljeni sledeći fajlovi:

- 1) *.SMP, sa opisom uzorka,
- 2) *.GRL, lista gama linija po kojoj su fitovani vrhovi u spektru
- 3) *.PKR, sa listom fitovanih gama vrhova u spektru uzorka prema *.GRL,
- 4) *B*.PKR, sa listom fitovanih gama vrhova u spektru fona, prema istoj *.GRL,
- 5) *.EFF, sa tabelom koja opisuje kalibraciju efikasnosti za dati detektor i sastav i geometriju uzorka.

*.EFF je tekstualni fajl, koji se posebnim programima CLCYEFF i CYEFFT dobija iz podataka dobijenih merenjem efikasnosti pomoću kalibracionog izvora odgovarajućeg sastava i geometrije. CLCYEF koristi listu vrhova *.PKR dobijenu pomoću programa GAMAR iz spektra kalibracionog izvora, da bi na osnovu poznate aktivnosti izvora izračunao efikasnost na diskretnim energijama linija prisutnih u kalibracionom izvoru, koje zatim ispiše u tekstualni fajl sa nastavkom *.EFM. Ovim parovima vrednosti mora biti pokrivena cela oblast energije u kojoj se nalaze gama linije od interesa. CYEFFT preuzima ovaj fajl i podatke fituje na empirijsku funkciju koja opisuje zavisnost efikasnosti od energije, a zatim ispisuje vrednosti efikasnosti na relativno gustoj energijskoj skali u obliku tekstualnog fajla *.EFF. Dobijena funkcija za različite visine cilindričnih kalibracionih izvora prikazana je na sl. 6.8, a u tab. 6.6 prikazano je zaglavlje i početak fajla LCL6732.EFF koji je najčešće korišćen u ovom radu.

Tab. 6.6. Zaglavlje i početak fajla za kalibraciju efikasnosti LCL6732.EFF

```

LCL6762.EFF written 00.05.18.10:41:11 by CYEFFT1.EXE 00.01.12.10:55
Efficiency vs. energy fit
@T !
=====
No      E~ (keV)          @e_f~ (E-3)
-----
1       40.0000(10)      12.8(17)
2       45.0000(10)      14.2(13)
3       50.0000(10)      15.8(11)
4       55.0000(10)      17.5(11)
5       60.0000(10)      19.1(13)
6       70.0000(10)      22.2(17)
7       80.0000(10)      24.7(21)

```

Rad programa ACTCN svodi se u grubim crtama na sledeće. On radi automatski i jedina intervencija korisnika je u unošenju maske fajlova koje treba obraditi. Za svaki prisutni *.SMP fajl

učitavaju se po 4 ostala gore spomenuta fajla, a rezultat obrade ispisuje se u tekstualni fajl sa produžetkom "*.OUT ". Primer jednog takvog fajla dat je u tab. 6.7.

Tab.6.7. Konačni rezultat obrade jednog od spektara kontaminiranog zemljišta

```

00.06.05.10:18:44 ACTCNA3.EXE 00.05.11.11:44 by J. Slivka
@REPORT OF ACTIVITY CONCENTRATION FROM PEAK TABLES OF HI RES $g-SPECTRA
Available memory 438720 bytes
=====
SAMPLE CODE          :LVJ22
=====
JOB                  :VJ
SAMPLE DESCRIPTION   :zemlja, rejon 1 uzorak 7
SAMPLE QUANTITY/UNIT :0.1370 kg
SAMPLING DATE/TIME  :00.05.31.12:00:00
MEASUREMENT END DATE/TIME :00.06.01.20:00:00
GEOMETRY CODE/DIMENSIONS :B 31.0
EFFICIENCY FILENAME  :LCL6731.EFF
BACKGROUND REPORT FILENAME :\SPC\LB000331.PKR
=====
LVJ22.PKR written 00.06.05.09:20:53 by GAMAR2.EXE 00.01.17.12:50
Spectrum file LVJ22.SPC 00.06.01.19:59
Energy calibration fit based on LVJ22.ECF 00.06.01.19:59
Shape calibration fit based on C:\JGAM\DAT\LCP.SCF 99.12.14.09:56
Peak list read from C:\JGAM\DAT\ENV82-2.GRL 00.03.09.12:49
4096 channels, measured for 44.472 ks
Integral count rate = 5.627(11) c/s
Shift: average=0.00(6) keV      max=0.34(21) keV at 795.13(18) keV
Line broadening: average=1.00(1) keV      Max=1.19(7) at 185.86(21) keV
Max FWHM = 2.42(17) keV at 1764.27(20) keV
=====
@ACTIVITY CONCENTRATION CALCULATED FROM PRESELECTED $g-LINES
@T ! ! ! ! ! ! !
-----
No  nuclide/daughter  @iE@,$g~(keV)  $D@iE@,$g~(keV)  $e~(E-3)  a~(Bq/kg)  a@,0~(Bq/kg)
-----
1  U--238~/Pb-210      46.520(20)      0.01(5)      29.2(20)      102(10)      102(10)
2  U--238~/Th-234      63.288(18)      -0.05(4)      38.2(20)      187(13)      187(13)
3  Th-232~/Ac-228      129.03(7)       -0.03(11)     52.0(27)      42(14)       42(14)
4  Th-232~/Th-228      131.50(6)       -0.03(10)     51.8(26)      0.25(10)E+03  0.25(10)E+03
5  U--238~/Ra-226/(EQ)  185.90(20)      -0.04(29)     42.8(16)      66(6)        66(6)
6  Th-232~/Ac-228      209.39(7)       -0.23(11)     38.6(15)      62(17)       62(17)
7  U--235~/Th-227      235.97(4)       0.01(6)       34.5(12)      5.6(14)      5.6(14)
8  Th-232~/Pb-212      238.578(4)      11(23)E-03    34.1(12)      52.0(24)     52.0(24)
9  Th-232~/Ra-224      240.76(10)      0.01(14)      33.8(12)      58(17)       58(17)
10 U--238~/Pb-214      241.92(3)       0.01(5)       33.6(12)      42(3)        42(3)
11 Th-232~/Ac-228      270.26(8)       -0.09(12)     30.1(9)       51(16)       51(16)
12 U--238~/Pb-214      295.091(24)     0.07(5)       27.4(9)       34.3(20)     34.3(20)
13 U--238~/Pb-214      351.87(4)       0.01(6)       22.8(8)       34.9(19)     34.9(19)
14 Th-232~/Ti-206      583.022(22)     0.14(5)       14.0(4)       52.3(29)     52.3(29)
15 U--238~/Bi-214      609.311(13)     -0.04(3)      13.4(4)       32.2(16)     32.2(16)
16 Cs-137              661.660(3)      -0.04(3)      12.6(4)       60.5(23)     60.6(23)
17 U--238~/Bi-214      665.422(17)     -0.04(4)      12.5(4)       25(15)       25(15)
18 Th-232~/Ac-228      794.79(11)      0.34(21)     10.9(4)       57(10)       57(10)
19 Th-232~/Ti-206      860.30(6)       0.18(13)     10.32(29)     56(7)        56(7)
20 Th-232~/Ac-228      911.16(3)       0.00(7)       9.94(24)      49(6)        49(6)
21 U--238~/Pb-214      964.07(3)       -0.01(7)      9.55(26)      0.05(14)E+03  0.05(14)E+03
22 Th-232~/Ac-228      964.64(8)       -0.01(13)     9.55(26)      48(12)       48(12)
23 Th-232~/Ac-228      968.97(5)       -0.01(9)      9.52(27)      50(6)        50(6)
24 U--238~/Pa-234      1001.00(3)      -0.01(15)     9.3(3)        0.24(4)E+03  0.24(4)E+03
25 U--238~/Bi-214      1120.273(18)    0.02(7)       8.74(18)      35(4)        35(4)
26 U--238~/Bi-214      1238.107(25)    0.06(14)      8.28(18)      28(6)        28(6)
27 K--40               1460.832(10)    0.09(10)      7.76(11)      726(23)      726(23)
28 U--238~/Bi-214      1764.490(22)    -0.22(20)     7.47(19)      35(4)        35(4)
=====
@cPEAKS FOUND IN SAMPLE SPECTRUM
identified using C:\JGAM\DAT\ENVIRON1.LIB 93.01.09.18:49
as closest peak within 0.30-keV
LVJ22.PKF written 00.06.05.09:23:58 by GAMAR2.EXE 00.01.17.12:50
Spectrum file LVJ22.SPC 00.06.01.19:59
Energy calibration fit based on LVJ22.ECF 00.06.01.19:59
Shape calibration fit based on C:\JGAM\DAT\LCP.SCF 99.12.14.09:56
searchdev= 4.00 fitdev= 4.00
@T ! ! ! ! ! ! !
-----
No  @iE@,$g~(keV)  $D@iE@,$g~(keV)  ar~(c/ks)  closest-nuclide/daughter~~~~next-closest
-----
1  32.07(9)        0(9)E+36         8.6(10)    U--238~/Pb-210
2  46.57(3)        0.05(4)          16.8(14)   U--238~/Th-234
3  63.270(27)      -0.02(3)         37.3(13)   Am-243
4  74.656(24)      -16(24)E-03      49(5)      Th-232~/Pb-212~/BiKva1
5  77.169(25)      62(25)E-03       87(6)      U--235~/Th-231
6  84.01(5)        -0.19(5)         9.6(24)    U--238~/Pb-214~/BiKvb1'
7  87.12(3)        -0.07(3)         25.7(29)   Th-232~/Ac-228~/ThKva2'
8  89.80(4)        -0.15(4)         17.1(26)   U--238~/Pb-214~/PcKvb2'
9  92.663(24)      -10(25)E-03      62(4)      Th-232~/Ac-228
10 98.77(12)       -0.78(14)        4.7(21)
11 105.30(5)       -0.31(8)         3.1(19)    Eu-155
12 129.02(6)       -0.31(9)         8.0(9)     Th-232~/Ac-228
13 143.83(11)      0.04(11)         3.6(8)     U--235
14 153.90(9)       0.01(13)         3.9(8)     Th-232~/Ac-228
15 165.87(4)       0.13(4)         21.5(13)   U--235
16 209.16(6)       -0.23(9)         19.7(8)    Th-232~/Ac-228
17 238.620(18)    42(18)E-03       107(4)     Th-232~/Pb-212
18 241.86(3)       -0.06(4)         18.5(25)   U--238~/Pb-214

```

19	270.20(4)	-0.06(9)	8.5(7)	Th-232~/Ac-228
20	277.38(11)	0.10(13)	4.5(6)	Th-232~/Ti-208
21	295.176(26)	0.08(4)	33.5(15)	U--238~/Pb-214
22	300.06(4)	-0.01(4)	7.5(7)	U--235~/Pa-231
23	328.03(8)	-0.04(12)	5.3(7)	Th-232~/Ac-228
24	338.33(3)	0.05(5)	20.2(10)	U--235~/Ra-223
25	351.924(21)	0.05(4)	54.6(14)	U--238~/Pb-214
26	409.65(13)	0.05(15)	3.0(5)	Th-232~/Ac-228
27	462.94(5)	-0.16(9)	6.0(6)	Th-232~/Ac-228
28	510.78(5)	0.17(5)	17.2(20)	Th-232~/Ti-208
29	533.221(28)	-0.06(19)	32.3(9)	Th-232~/Ac-228
30	609.304(26)	-7(29)E-03	38.9(11)	U--238~/Bi-214
31	661.685(21)	25(21)E-03	88.9(23)	Cs-137~/Ba-137
32	727.37(6)	0.12(8)	7.0(5)	Th-232~/Bi-212
33	768.50(8)	0.15(8)	2.6(7)	U--238~/Bi-214
34	785.80(14)	-0.03(14)	1.9(4)	U--238~/Pb-214
35	795.09(9)	0.30(14)	3.7(5)	Th-232~/Ac-228
36	835.67(8)	0.07(12)	1.9(4)	Th-232~/Ac-228
37	846.57(16)	-0.24(16)	1.4(3)	Co--56
38	860.53(6)	0.23(8)	3.6(4)	Th-232~/Ti-208
39	911.22(4)	0.06(5)	20.1(8)	Th-232~/Ac-228
40	934.21(12)	0.17(12)	2.2(3)	U--238~/Bi-214
41	964.64(11)	0.00(14)	4.1(5)	Th-232~/Ac-228
42	969.06(5)	0.09(7)	11.6(7)	Th-232~/Ac-228
43	1120.38(6)	0.11(6)	8.7(6)	U--238~/Bi-214
44	1238.05(12)	-0.06(12)	2.9(4)	U--238~/Bi-214
45	1377.71(14)	0.05(14)	1.8(3)	U--238~/Bi-214
46	1461.02(6)	0.19(6)	83.5(25)	K--40
47	1764.37(15)	-0.12(15)	7.2(5)	U--238~/Bi-214

LVJ22.SMP

@cNUCLIDE ACTIVITY CONCENTRATION

No	nuclide/daughter	a~(Bq/kg)	chsqqpdf	confid 0.90	a~(Bq/kg)	maxactdev at keV	a~(Bq/kg)
1	U--238~/Pb-210	102(10)		102(16)	102\$+16		102+-16
2	U--238~/Th-234	187(13)		187(21)	187\$+21		187+-21
3	Th-232~/Ac-226	50(3)	0.23	50(5)	50\$+5		50+-5
4	Th-232~/Th-226	0.25(10)E+03		0.25(16)E+03	(0.25\$+0.16)E+03		(0.25+-0.16)E+03
5	U--238~/Ra-226/(EQL)	68(6)		68(10)	68\$+10		68+-10
6	U--235~/Th-227	5.6(14)		5.6(23)	5.6\$+2.3		5.6+-2.3
7	Th-232~/Pb-212	52.0(24)		52(4)	52\$+4		52+-4
8	Th-232~/Ra-224	58(17)		58(24)	58\$+26		58+-28
9	U--238~/Pb-214	35.7(13)	1.40	35.7(25)	35.7\$+2.5	964.07(3)	35.7+-2.5
10	Th-232~/Ti-208	52.8(27)	0.25	53(4)	53\$+4		53+-4
11	U--238~/Bi-214	32.7(14)	0.47	32.7(23)	32.7\$+2.3		32.7+-2.3
12	Cs-137	60.6(23)		61(4)	61\$+4		61+-4
13	U--238~/Pa-234	0.24(4)E+03		0.24(7)E+03	(0.24\$+0.07)E+03		(0.24+-0.07)E+03
14	K--40	726(23)		0.73(4)E+03	(0.73\$+0.04)E+03		(0.73+-0.04)E+03
=====							
	U--238	36.9(10)	48.49	37(12)	37\$+12		
	U--235	5.6(14)		5.6(23)	5.6\$+2.3		
	Th-232	52.0(16)	1.23	52.0(29)	52.0\$+2.9		
	K--40	726(23)		0.73(4)E+03	(0.73\$+0.04)E+03		
	Natural	820(24)		0.82(4)E+03	(0.82\$+0.04)E+03		
	Artificial	60.6(23)		61(4)	61\$+4		
	Total	881(24)		0.88(4)E+03	(0.88\$+0.04)E+03		
	U--238~/234-234	191(12)	1.43	191(24)	191\$+24		
	U--238~/210-214	35.0(9)	6.20	35(4)	35\$+4		
	U--238/U--235(186-keV)	111(11)		111(19)	111\$+19		
	U--238/226-234	142(9)	18.60	0.14(6)E+03	(0.14\$+0.06)E+03		
	U--238/226-235	140(9)	9.51	0.14(4)E+03	(0.14\$+0.04)E+03		
	Build. mat. index	0.605(15)		0.605(25)	0.605\$+0.025		
	Buildex. mat. index	0.378(9)		0.378(14)	0.378\$+0.014		

00.06.05.10:18:44 exiting ACTCNA3.EXE 00.05.11.11:44 after 00:00:00.33

Nakon ispisivanja opštih podataka o uzorku i snimljenom spektru, program ispisuje u delu tabele sa podnaslovom ACTIVITY CONCENTRATION CALCULATED FROM PRESELECTED \$g-LINES koncentracije aktivnosti radionuklida iz gama linija sa unapred odabrane odgovarajuće liste *.GRL. U prvoj koloni su imena radioizotopa (uključujući eventualno imena rodonačelnika nizova kojima pripadaju); u drugoj koloni su energije unapred zadatih, u spektru prisutnih linija, na osnovu kojih su radionuklidi identifikovani; u trećoj koloni su odstupanja u energiji nađenih, stvarnih linija u odnosu na one unapred zadate; u četvrtoj koloni je data efikasnost za datu energiju dobijena interpolacijom tabelarnih vrednosti u *.EFF; u petoj koloni su izračunate vrednosti koncentracija aktivnosti po završetku merenja, a u šestoj koncentracija aktivnosti preračunata na vreme uzorkovanja. One se međusobno neće razlikovati ukoliko je reč o dugoživećim izotopima, ali razlike postoje kod kratkoživećih izotopa. Rodonačelnici nizova se navode ispred imena radionuklida da bi se naglasilo da se njihova aktivnost posmatra u okviru niza, pod pretpostavkom postojanja radioaktivne ravnoteže. Koncentracije aktivnosti su dobijene tako što se od brzine brojanja za pojedine linije u listi *.PKR za uzorak oduzima brzina brojanja odgovarajuće linije iz spektra fona *B*.PKR. Tako dobijena neto brzina brojanja se preračunava u aktivnost koristeći efikasnost za datu energiju.

Drugi deo tabele sa podnaslovom PEAKS FOUND IN SAMPLE SPECTRUM sadrži pregled brzine brojanja svih automatski nađenih vrhova u spektru (poreklom iz *.PKF), čija je identifikacija izvršena

pomoću opšteg učitanog spiska linija (*.LBC). U njoj su takođe zabeležena energijska ostupanja stvarnih linija u odnosu na linije sa spiska, a sama identifikacija izvršena je samo na osnovu poklapanja energije nađene linije sa tabelarnom energijom unutar intervala od ± 0.3 keV. Ova tabela omogućuje uvid u prisutnost neočekivanih radionuklida.

U trećem delu tabele sa podnaslovom *NUCLIDE ACTIVITY CONCENTRATION* su prikazane koncentracije aktivnosti pojedinih radionuklida. Ukoliko postoji više vrhova za dati radionuklid, izračunata koncentracija aktivnosti predstavlja otežanu srednju vrednost iz više vrhova, uz navođenje odgovarajuće vrednosti χ^2 . Greške se u programu računaju na nivou poverenja od 63.8%, ali ono što predstavlja krajnji rezultat je na nivou poverenja od 90%. Ako je vrednost χ^2 veća od 1, onda se greška otežane srednje vrednosti množi sa $\sqrt{\chi^2}$. Za one radionuklide čija je samo jedna linija nađena u spektru, ispisana je koncentracija aktivnosti izračunata samo na osnovu te jedne linije.

Druga polovina trećeg dela tabele sadrži vrednosti koncentracije aktivnosti za ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th i ^{40}K respektivno. Koncentracija aktivnosti ^{238}U je izračunata kao otežana srednja vrednost koncentracija aktivnosti njegovih potomaka (neke od njih i same predstavljaju otežane srednje vrednosti), a pod pretpostavkom postojanja radioaktivne ravnoteže uranijum-radijumovog niza. Navedena vrednost χ^2 , ako je znatno veća od 1, ovde govori o narušavanju radioaktivne ravnoteže. Ono što je rečeno za ^{238}U , analogno važi i za ^{232}Th . Koncentracija aktivnosti ^{235}U određena je samo na osnovu jedne linije ($^{235}\text{U}/^{227}\text{Th}$; 235.97 keV). Isti slučaj je i sa ^{40}K (1460.49 keV). Zbir koncentracija aktivnosti ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th i ^{40}K predstavljen je u vrsti pod nazivom "natural", što znači da je ovo koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida. Zatim je u stavci "artificial" predstavljena koncentracija aktivnosti koja potiče od nađenih veštačkih radionuklida, a potom i ukupna koncentracija aktivnosti—"total":zbir "natural"+"artificial".

Ovde se nalaze i koncentracije aktivnosti ^{238}U izračunate na više načina:

- 1) U-238/U-235, na osnovu aktivnosti ^{235}U , pretpostavljajući prirodni odnos $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$,
- 2) U-238/234-234, iz linija ^{234}Th :63 keV i Pa:1001 keV,
- 3) U-238/210-214, iz linija ^{210}Pb , ^{214}Pb i ^{214}Bi (posleradonske linije),
- 4) U-238/U-235(186 keV), iz linije od 186 keV kojoj doprinos daju ^{235}U i ^{226}Ra , što će kasnije biti detaljnije objašnjeno [§6.2.2.2],
- 5) U-238/226-234, izračunavanjem srednje vrednosti na osnovu vrednosti dobijenih pod 2) i 4),
- 6) U-238/226-235, izračunavanjem srednje vrednosti na osnovu vrednosti dobijenih pod 1), 2) i 4).

6.2.2. Gama spektrometrijska analiza prirodnog uranijuma u zemljištu

6.2.2.1. Priprema uzorka za merenje

Uzorak zemljišta koga želimo da analiziramo, moramo najpre osušiti u cilju koncentrisanja prisutnih radionuklida, što neće poremetiti njihov sadržaj, izuzev tricijuma i radona. Sušenje se obavlja prirodnim putem ili u sušnici, raspoređivanjem uzorka u tankom sloju na pogodnu podlogu. Iz uzorka je već pre sušenja potrebno otkloniti kamenčiće, korenje biljaka, travu, malo busenje i sl. Nakon sušenja uzorak se mora homogenizovati, a to se postiže mrvljenjem odnosno spršaivanjem uzorka u avanu pomoću tučka. Zbog procesa pripreme, radon ne može ostati u ravnoteži sa radioaktivnim nizom. Međutim, naknadna ravnoteža se postiže hermetičkim zatvaranjem uzorka pre merenja na vremenski interval od oko 10 radonovih perioda poluraspada, što iznosi oko 40 dana. Uzorci se pakuju u cilindrične plastične kutije prečnika 67 mm i visine 32 mm. Merenja se upravo vrše u cilindričnoj geometriji uzorka (jedna kutija ili dve objedinjene kutije).

6.2.2.2. Spektralne karakteristike γ linija uranijumovih nizova i mogućnosti određivanja sadržaja prirodnog uranijuma u uzorku na bazi γ spektra

Kao što je već pomenuto, kada je radioaktivni niz u ravnoteži, aktivnosti svih radionuklida u nizu su iste, pa se koncentracija predaka može odrediti merenjem intenziteta γ -zračenja bilo kog

potomka. Narušavanje ravnoteže usled geohemijskih procesa moguće je kod dugoživećih članova niza (^{230}Th i ^{226}Ra u nizu ^{238}U , te ^{231}Pa u nizu ^{235}U), što može predstavljati značajnu poteškoću prilikom merenja. Sa druge strane, emanacija gasa radona iz uzorka narušava ravnotežu nizova kod članova ^{222}Rn i ^{219}Rn , ali se ona ponovo uspostavlja hermetizacijom uzorka.

Znajući da se prirodni odnos izotopskog sastava uranijuma ne menja, γ -linije iz niza ^{235}U bi se u principu mogle iskoristiti za određivanje sadržaja ^{238}U u uzorku zemljišta, ali je zbog male izotopske obilnosti ^{235}U njihov intenzitet slab. Takođe, neke od njih se javljaju u nerazdvojivim dubletima sa γ -linijama ostalih dvaju prirodnih nizova.

U raspadima celog niza ^{238}U se emituje oko 50 intenzivnijih karakterističnih γ linija pomoću kojih se principijelno mogu dobiti podaci o aktivnostima članova niza [Bikit93]. Međutim, samo oko 2% od ukupnog γ zračenja niza se emituje iz članova niza pre ^{226}Ra za koje možemo pretpostaviti da su u ravnoteži sa ^{238}U . U raspadu direktnih potomaka ^{238}U – jezgara ^{234}Th i ^{234}Pa , dominiraju γ linije navedene u tabeli 6.8.

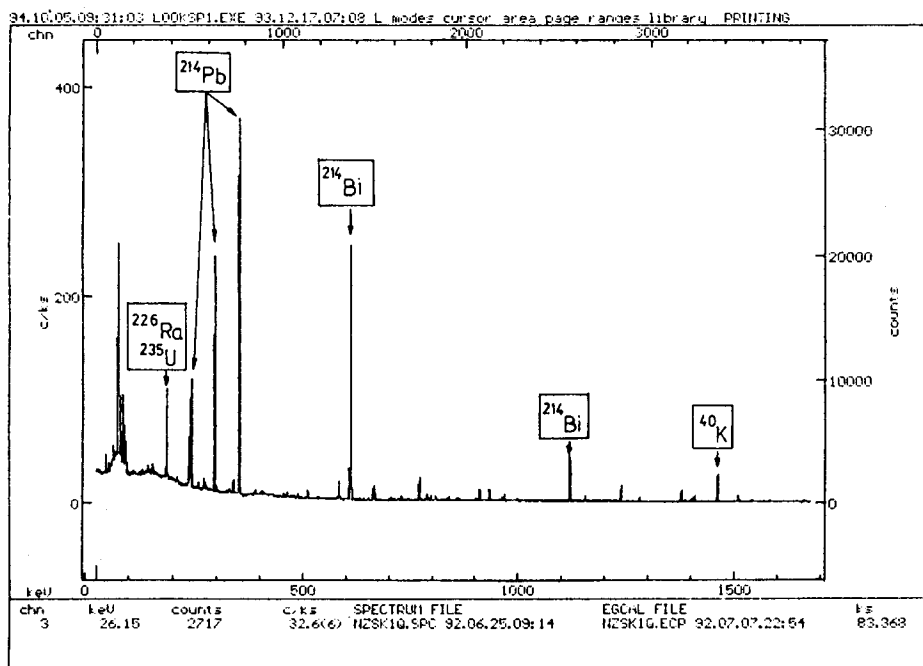
Tab.6.8. Najintenzivnije γ linije direktnih potomaka ^{238}U . E_γ je energija prelaza, a p_γ je broj emitovanih γ kvanata po raspadu jezgra (apsolutni intenzitet)

Jezgro	E_γ [keV]	p_γ [%]
^{234}Th	63.3	3.8
	92.3	2.7
	92.8	2.7
^{234}Pa	76.6	0.4
	98.4	0.2
	1001	0.9

Dakle, intenzivnije linije ^{234}Th se nalaze u niskoenergijskom delu γ spektra gde su izraženi problemi vezani za efikasnost detekcije i gde se javlja mnoštvo linija od drugih jezgara i karakterističnog X zračenja elemenata. Linija ^{234}Pa od 1001 keV se nalazi u pogodnoj oblasti spektra, ali ima slab intenzitet.

Gama linija od 186 keV predstavlja jednu od najintenzivnijih linija uranijumovih nizova. To je dublet koji grade linija od 186.1 keV iz raspada ^{226}Ra i linija od 185.7 keV iz raspada ^{235}U . U slučaju ravnoteže nizova, intenzitetu ovog instrumentalno nerazdvojivog dubleta obe komponente doprinose približno jednako. Određivanjem aktivnosti ^{226}Ra iz posleradonskih analitičkih linija (kada je radon u uzorku doveden u ravnotežu) može se odrediti koliki doprinos intenzitetu linije od 186 keV daje ^{235}U , tj. koliko ^{235}U , odnosno ^{238}U ima u uzorku.

Raspad posleradonskih članova niza ^{238}U praćen je mnoštvom jakih γ prelaza koji su pogodni za analitičke svrhe. Od većeg broja jakih prelaza iz raspada jezgara ^{214}Pb i ^{214}Bi , sa linijama prirodnih radioaktivnih nizova ne interferiraju jake linije ^{214}Bi od 609.3 keV, 1120.3 keV i 1764.5 keV. Ukoliko je radon u uzorku u ravnoteži, mereni intenziteti ovih linija daju direktnu informaciju o koncentraciji aktivnosti ^{226}Ra , a to znači i ^{238}U ukoliko postoji ravnoteža svih članova niza. Razlika između koncentracije aktivnosti ^{226}Ra i koncentracije aktivnosti ^{238}U određene iz γ linija članova koji prethode ^{226}Ra ($A > 226$), govori o stepenu narušavanja ravnoteže ^{226}Ra u nizu. Na sl. 6.10 predstavljen je γ spektar zemlje iz Kalne gde se nekada nalazio rudnik uranijuma.



Sl. 6.10. Spektar γ zraka zemlje iz Kalne

Imajući u vidu sve prethodno iznesene činjenice, za određivanje sadržaja ^{238}U u uzorku primenjujemo sledeće varijante [Bikit93]:

1. Korišćenje svih analitičkih linija uz uslov postojanja ravnoteže u celom nizu, što pruža statistički najbolje definisan rezultat. Inače, korektnom statističkom obradom odstupanja aktivnosti ^{238}U , dobijenih iz analitičkih linija raznih radionuklida, od srednje vrednosti, može se (u okviru greške merenja) utvrditi u kojoj meri je narušena ravnoteža niza. Ovo je jedini način obrade podataka ako se aktivnost celog niza ^{238}U želi iskazati jednim brojem. Međutim, zbog statistički mnogo bolje definisanosti linija iz posleradonskih članova niza, ovako dobijen rezultat pretežno zavisi od koncentracije ^{226}Ra u uzorku, a ne toliko od koncentracije ^{238}U .

2. Merenje bazirano na intenzitetu linije od 186 keV. Doprinos linije ^{226}Ra intenzitetu linije od 186 keV se može precizno ustanoviti određivanjem koncentracije ^{226}Ra iz posleradonskih linija. Moguće varijacije koncentracije 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 ^{226}Ra u uzorku se iz ukupnog intenziteta linije od 186 keV može odrediti koncentracija ^{235}U , odnosno, na osnovu poznate izotopske obilnosti ^{235}U u prirodnom U, i ^{238}U .

3. Merenje zasnovano na niskoenergijskim linijama ^{234}Th . Ova metoda daje najpouzdaniji rezultat obzirom da je ^{234}Th neposredni potomak ^{238}U . Ipak, merenje samog intenziteta slabih niskoenergijskih γ linija često nije jednostavno. Pre svega, u zaštitnim komorama od olova, X zračenje od ovog elementa može da "prekrije" liniju od 63.3 keV, a i efikasnost mnogih detektora ispod 100 keV brzo opada. Pored ovih problema, zbog kojih je statistička greška ove metode obično velika (~20%), kao izvor sistematske greške relativnih merenja se javlja i različita apsorpcija niskoenergijskog zračenja u uzorcima nešto različite gustine.

Na osnovu izloženih glavnih mogućih metoda određivanja ^{238}U iz izmerenih γ spektara i njihovih ograničenja, možemo zaključiti da kombinacija metoda 2 i 3 daje najpouzdanije i najpreciznije rezultate u praćenju malih varijacija koncentracije ^{238}U u prirodnim uzorcima. Međutim, uzimajući u obzir potencijalne izvore grešaka, često se i kod pažljivo izvedenih merenja dobijaju rezultati o koncentraciji ^{238}U sa nesigurnošću reda veličine 10%.

Ipak, ako se podsetimo da se metodom γ spektrometrije rezultati dobijaju bez ikakvog hemijskog tretmana uzorka, možemo zaključiti da je po pouzdanosti ova metoda kompetitivna sa alternativnim tehnikama određivanja sadržaja uranijuma.

6.2.3. Gama spektrometrijska analiza osiromašenog uranijuma u zemljištu

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 (osim od ^{234}U).

Gama-spektrometrijsko određivanje osiromašenog uranijuma u zemljištu koje je relativno jako kontaminirano, tj. kada koncentracija aktivnosti ^{238}U za red veličine ili više prevazilazi uobičajenu koncentraciju aktivnosti ^{238}U u zemljištu (10 Bq/kg – 100 Bq/kg), može relativno lako da se izvede direktnim merenjem niskoenergijskih linija ^{234}Th , koje su tada dovoljno intenzivne. Tada se praktično u okviru uobičajene merne nesigurnosti od oko 20% može pretpostaviti da sav ^{238}U potiče iz osiromašenog uranijuma. U ovom slučaju je moguće relativno pouzdano odrediti i odnos obilnosti $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ korišćenjem kombinovane linije na 186 keV, jer ona praktično potiče samo od ^{235}U . 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 ^{238}U .

Međutim, u slučaju da je koncentracija aktivnosti ^{238}U iz osiromašenog U uporediva sa koncentracijom aktivnosti ^{238}U iz prirodno prisutnog U, problem postaje mnogo složeniji. Koncentracija prirodno prisutnog ^{238}U mora se odrediti samo iz koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , za koga se može pretpostaviti da je u približnoj radioaktivnoj ravnoteži sa prirodno prisutnim ^{238}U . Pri tome se za preračunavanje mora uzeti empirijski određeni faktor neravnoteže $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ koji iznosi 1.3 ± 0.3 . Sada se ne može koristiti određivanje pomoću kombinovane linije na 186 keV, jer je izotopska obilnost ^{235}U 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 ^{238}U mora se odrediti iz niskoenergijskih linija ^{234}Th , što za sobom povlači sve ranije opisane probleme. U ovom slučaju veliku prednost pokazuju baš poluprovodnički detektori tipa GMX, kod kojih je povećana efikasnost u niskoenergijskom delu (ispod 100 keV).

Koncentracija aktivnosti ^{238}U koja potiče samo od osiromašenog uranijuma na taj način može se iskazati kao razlika ukupne koncentracije aktivnosti ^{238}U i koncentracije aktivnosti ^{226}Ra . Merna nesigurnost ove razlike biće prvenstveno uslovljena mernom nesigurnošću koncentracije aktivnosti ^{238}U , pošto je merna nesigurnost koncentracije aktivnosti ^{226}Ra manja.

7. REZULTATI MERENJA SADRŽAJA OSIROMAŠENOG URANIJUMA U ZEMLJIŠTU I DISKUSIJA

Opisani metod određivanja koncentracija aktivnosti osiromašenog uranijuma testiran je na brojnim uzorcima koji su ispitani u Laboratoriji za Nuklearnu fiziku Instituta za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu. 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.

Rezultati merenja prikazani su u tabeli 6.9. Prve tri kolone ove tabele karakterišu uzorak, u četvrtu kolonu je uneta koncentracija aktivnosti ^{238}U izračunata iz potomaka ^{238}U : ^{234}Th i ^{234}Pa , u petu kolonu koncentracija aktivnosti ^{226}Ra izračunata iz potomaka ^{226}Ra posle ^{222}Rn : ^{214}Pb , ^{214}Bi i ^{210}Pb . U šestoj koloni su izračunate vrednosti koncentracije aktivnosti ^{238}U koje se mogu pripisati kontaminaciji osiromašenom uranijumu. U sedmoj i osmoj koloni su radi poređenja koncentracije aktivnosti prirodno prisutnih ^{40}K i ^{232}Th .

Da bi bilo jasno na koji način je računata koncentracija aktivnosti uranijuma-238 koji potiče od *osiromašenog uranijuma*, sa odgovarajućom mernom nesigurnošću, $a(^{238}\text{U}_D) \pm \Delta a(^{238}\text{U}_D)$, uvedimo sledeće oznake:

- $a(^{238}\text{U}) \pm \Delta a(^{238}\text{U})$ – koncentracija aktivnosti ^{238}U dobijena iz linija ^{234}Th i ^{234}Pa ,
- $a(^{226}\text{Ra}) \pm \Delta a(^{226}\text{Ra})$ – koncentracija aktivnosti ^{226}Ra dobijena iz postradonskih linija izotopa ^{210}Pb , ^{214}Pb , ^{214}Bi .
- $F \pm \Delta F$ – ranije uveden empirijski faktor koji predstavlja odnos koncentracija aktivnosti ^{238}U i ^{226}Ra (čime smo uzeli u obzir mogućnost narušavanja ravnoteže uranijumovog niza u prirodno prisutnom uranijumu), $F = 1.3 \pm 0.3$.

Tada je :

$$a(^{238}\text{U}_D) = a(^{238}\text{U}) - F a(^{226}\text{Ra}),$$

sa odgovarajućom mernom nesigurnošću

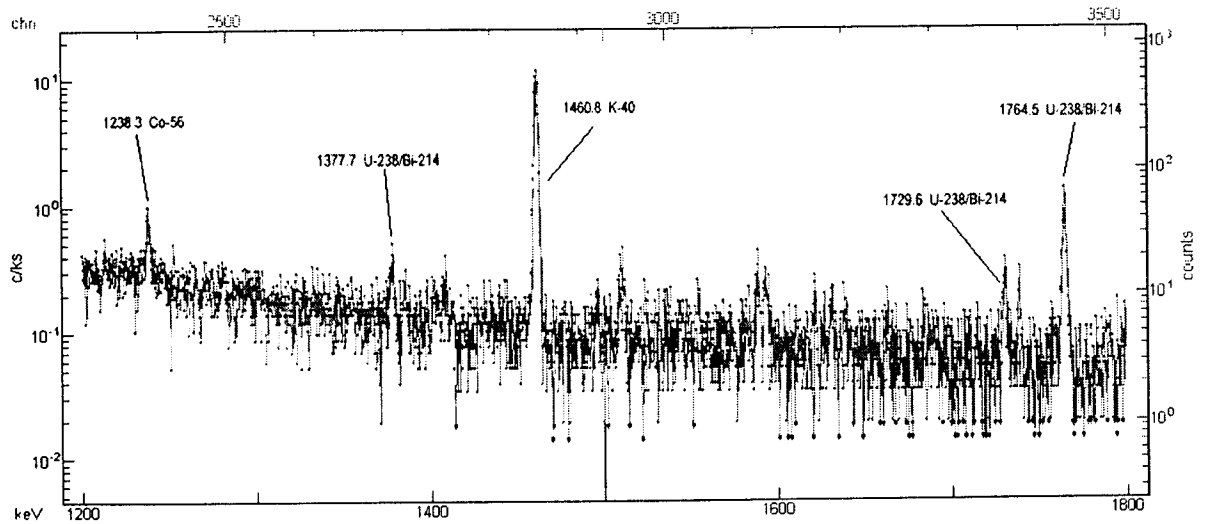
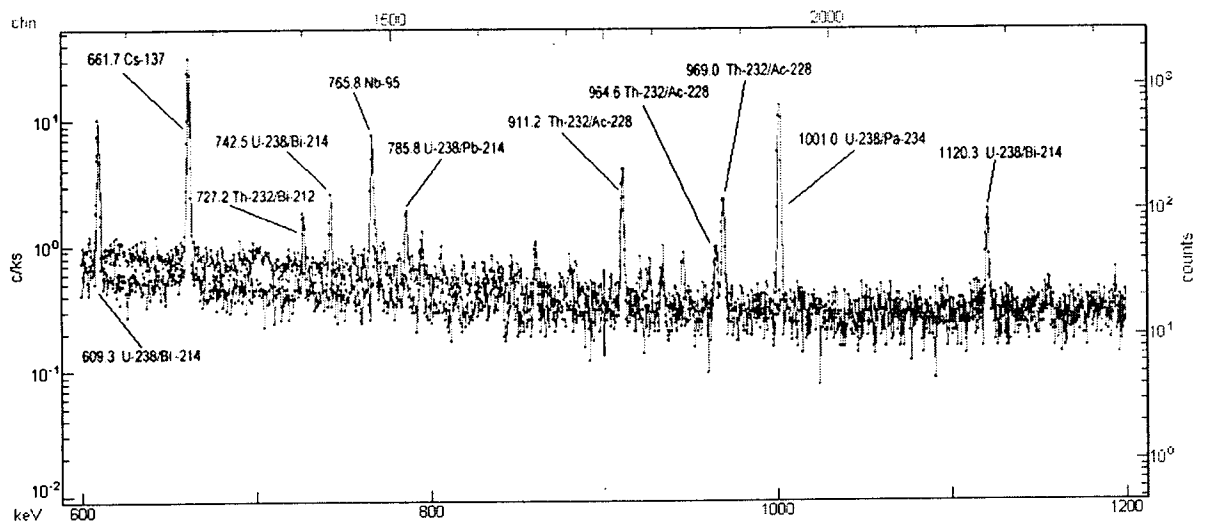
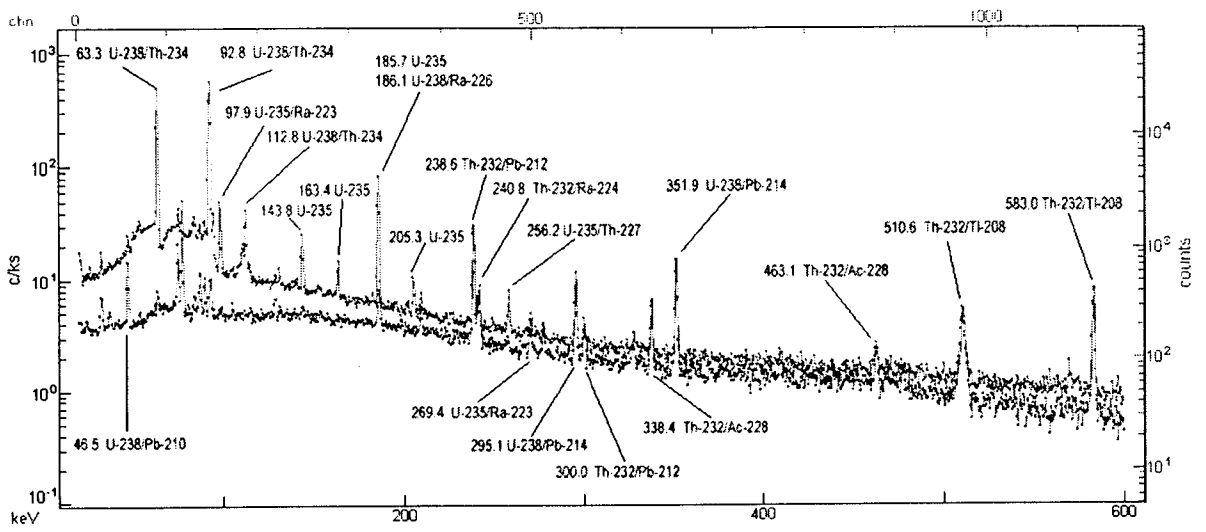
$$\Delta a(^{238}\text{U}_D) = \left\{ \left[\Delta a(^{238}\text{U}) \right]^2 + \left[\Delta a_F \right]^2 \right\}^{1/2},$$

gde je

$$\Delta a_F = F \left\{ \left[\frac{\Delta a(^{226}\text{Ra})}{a(^{226}\text{Ra})} \right]^2 + \left(\frac{\Delta F}{F} \right)^2 \right\}^{1/2}.$$

Kao reprezentativne primere merenja koncentracije aktivnosti ^{238}U koji je poreklom iz *osiromašenog uranijuma* navedimo uzorke **LVJ4**, **LVJ3** i **LVJ19** (Tab.6.9). Gama spektri uzoraka **LVJ4** i **LVJ19** uporedo su prikazani na sl 6.11. Uzorak **LVJ4** ima vrlo veliku koncentraciju aktivnosti ^{238}U , pri čemu se ona sva praktično može pripisati kontaminaciji *osiromašenim uranijumom* (koncentracija aktivnosti prirodno prisutnog uranijuma je zanemarljiva), dok uzorak **LVJ19** nije kontaminiran, a iskazani rezultat govori o redu veličine granice detekcije ^{238}U iz *osiromašenog uranijuma* koja se postiže opisanom metodom i pomoću opisanog uređaja. Na primer, uzorak **LVJ3** ima koncentraciju aktivnosti ^{238}U , koja je sigurno povišena usled kontaminacije *osiromašenim uranijumom*. Inače, u tabelama su svi sigurno kontaminirani uzorci navedeni pojačanim slovima.

Reproducibilnost rezultata merenja (u okviru merne nesigurnosti), vidljiva je na osnovu naknadnih merenja izvršenih posle dužeg intervala vremena na uzorcima **LVJ22**, **LVJ14** i **LVJ16** (Tab.6.9). Šifre ovih uzoraka u ponovnim merenjima sadrže povlaku iza koje sledi broj 1.



Sl.6.11. Gama spektri uzoraka LVJ4 i LVJ19

Tab. 6.9. Koncentracije aktivnosti karakterističnih radionuklida u uzorcima zemlje

REJON	UZORAK	ŠIFRA	²³⁸ U [Bq/kg]	²²⁶ Ra [Bq/kg] post R _n	²³⁸ U _D [Bq/kg]	⁴⁰ K [kBq/kg]	²³² Th [Bq/kg]
1	1	LVJ18	29 ± 7	15.7 ± 2.9	<18	0.450 ± 0.022	34.4 ± 1.9
1	2	LVJ19	25 ± 6	15 ± 4	<15	0.480 ± 0.023	34.5 ± 2.3
1	srednji 3 i 4	LVJ4	5000 ± 1300	19.8 ± 2.1	5000 ± 1300	0.53 ± 0.04	30 ± 3
1	5	LVJ20	70 ± 12	29 ± 5	32 ± 16	0.587 ± 0.028	46.5 ± 2.5
1	6	LVJ21	42 ± 8	30 ± 4	<16	0.554 ± 0.027	42.2 ± 2.4
1	7	LVJ22 LVJ22-1	191 ± 24 201 ± 25	35 ± 4 52 ± 3	146 ± 27 133 ± 30	0.73 ± 0.04 0.689 ± 0.297	52.0 ± 2.9 51.2 ± 2.7
1	8	LVJ23	32 ± 11	24 ± 4	<15	0.522 ± 0.026	41.8 ± 2.5
2	srednji	LVJ3	115 ± 15	13.2 ± 2.3	98 ± 16	0.187 ± 0.022	13.5 ± 1.1
2	1	LVJ24	17 ± 10	8.3 ± 2.2	<17	0.128 ± 0.011	11.4 ± 0.9
2	2	LVJ25	14 ± 5	9.6 ± 1.4	<8	0.116 ± 0.010	13.1 ± 1.0
2	3	LVJ26	75 ± 10	10.8 ± 1.9	61 ± 11	0.137 ± 0.010	12.4 ± 0.9
2	4	LVJ27	19 ± 5	11.3 ± 1.8	<10	0.145 ± 0.010	14.0 ± 1.0
2	5	LVJ28	16 ± 6	7.5 ± 1.8	<13	0.141 ± 0.010	11.4 ± 0.7
3	srednji	LVJ5	2000 ± 600	116 ± 11	1850 ± 600	1.28 ± 0.09	72 ± 7
3	1	LVJ14 LVJ14-1	133 ± 19 113 ± 18	82 ± 7 76 ± 6	<70 <40	0.76 ± 0.03 0.695 ± 0.028	55 ± 3 52 ± 3
3	2	LVJ15	107 ± 14	67 ± 7	<60	0.81 ± 0.04	46.9 ± 2.6
3	3	LVJ16 LVJ16-1	115 ± 14 108 ± 14	68 ± 6 72 ± 7	<60 <50	0.81 ± 0.03 0.76 ± 0.04	49.7 ± 2.6 47.7 ± 2.6
3	4	LVJ17	56 ± 9	30 ± 4	17 ± 14	0.510 ± 0.027	30.9 ± 2.0
4	srednji A	LVJ2	42 ± 9	22 ± 3	13 ± 12	1.14 ± 0.08	52 ± 3
4	srednji B	LVJ1	74 ± 10	29.7 ± 2.8	35 ± 14	1.15 ± 0.07	62 ± 4
4	1	LVJ6	38 ± 8	19 ± 3	<27	1.18 ± 0.08	48.6 ± 2.8
4	2	LVJ8	65 ± 16	26 ± 4	31 ± 19	1.02 ± 0.07	67 ± 4
4	3	LVJ7	33 ± 8	22.4 ± 2.2	<15	1.21 ± 0.07	45 ± 3
4	4	LVJ9	41 ± 8	26.4 ± 2.6	<19	1.19 ± 0.08	51 ± 4
4	5	LVJ10	44 ± 7	24 ± 3	13 ± 11	1.29 ± 0.08	31.7 ± 2.4
4	6	LVJ11	40 ± 11	20 ± 3	14 ± 13	0.93 ± 0.06	41 ± 3
4	7	LVJ12	51 ± 9	25 ± 4	<40	0.85 ± 0.04	61 ± 3
4	8	LVJ13	47 ± 9	27.2 ± 2.1	<24	0.98 ± 0.05	64 ± 4
1	4	LVJBO1U4	20 ± 8	18.4 ± 1.6	<10	0.144 ± 0.013	16.5 ± 1.1
1	5	LVJBO1U5	10 ± 6	7.5 ± 1.1	<7	0.170 ± 0.017	8.9 ± 0.7
1	2	LVJBO1U2	21 ± 6	12.7 ± 1.9	<12	0.174 ± 0.011	12.9 ± 1.5
1	6	LVJBO1U6	29 ± 6	18 ± 3	<15	0.186 ± 0.011	18.5 ± 1.2
2	1	LVJBO2U1	24 ± 8	16.1 ± 1.9	<13	0.191 ± 0.011	16.2 ± 0.9
2	2	LVJBO2U2	26 ± 5	15.5 ± 2.8	<14	0.209 ± 0.011	16.0 ± 0.9
2	3	LVJBO2U3	18 ± 8	12.9 ± 2.2	<10	0.174 ± 0.012	13.5 ± 0.9
1	1	LVJBO1U1	19 ± 6	10.0 ± 1.1	<13	0.159 ± 0.011	9.8 ± 0.7

1	3	LVJBO1U3	19 ± 5	15.1 ± 2.0	<11	0.158 ± 0.015	17.4 ± 1.0
2	4	LVJBO2U4	24 ± 6	17.3 ± 2.5	<10	0.162 ± 0.010	15.5 ± 1.1
-	5A	LVJBRU5A	4000 ± 700	142 ± 10	3800 ± 700	0.90 ± 0.04	72 ± 7
-	5B	LVJBRU5B	1700 ± 400	138 ± 8	1500 ± 400	0.94 ± 0.04	75 ± 4
-	6	LVJBRU6	43 ± 9	46.8 ± 2.1	<17	0.43 ± 0.017	25.9 ± 1.3
-	4	LVJBRU4	70 ± 9	57.5 ± 2.2	<20	0.53 ± 0.03	35.7 ± 1.9
-	3	LVJBRU3	120 ± 18	103 ± 5	<40	0.83 ± 0.04	46.3 ± 2.3
-	2	LVJBRU2	81 ± 10	58.8 ± 2.4	<25	0.78 ± 0.04	34.5 ± 1.8
-	1	LVJBRU1	137 ± 21	112 ± 5	<50	0.91 ± 0.04	61 ± 4

8. ZAKLJUČAK

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 praćenje migracije radionuklida kroz tlo i/ili ako treba pratiti efekte dekontaminacije.

U Laboratoriji za nuklearnu fiziku je razrađena i ovde prikazana metoda za određivanje malih koncentracija aktivnosti ^{238}U koja potiče od osiromašenog uranijuma. 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 reda veličine 10 Bq/kg. Obzirom da je i koncentracija aktivnosti prirodnog uranijuma u zemljištu istog reda veličine, može se zaključiti da je gama-spektrometrijska metoda za određivanje koncentracije osiromašenog uranijuma u zemljištu, uz sve njene prednosti i ograničenja, dovoljno precizna i vrlo pogodna kao rutinska procedura za otkrivanje povećanih koncentracija, praćenje translokacije ili praćenje dekontaminacije osiromašenog uranijuma u zemljištu.

REFERENCE

- [Analysis 96] NUCLEAR, BIOLOGICAL AND CHEMICAL VULNERABILITY ANALYSIS, Army Field Manual 3-14; US Army Chemical School, July 1996
- [ATSDR97] TOXICOLOGICAL PROFILE FOR URANIUM, U. S. Agency for Toxic Substances and Disease Registry, September 1997
- [Bikit84] I. Bikit, L. Marinkov, M. Vesković, NISKOŠUMNA ZAŠTITA ZA POLUPROVODNIČKI GAMA SPEKTROMETAR, XXVIII Jugoslovenska konferencija ETAN-a, Split, 1984, *ETAN VI* 51 (1984)
- [Bikit85] I. Bikit, M. Vesković, L. Marinkov, PRIMENA POLUPROVODNIČKIH GAMA SPEKTROMETARA ZA KONTROLU RADIOAKTIVNOG ZAGAĐENJA PRIRODE, Zbornik radova XIII jugoslavenskog simpozija zaštite od zračenja, 1985, Jugoslovensko društvo za zaštitu od zračenja, 1985 p. II-650
- [Bikit93] I. Bikit, J. Slivka, GAMA-SPEKTROMETRIJSKO ODREĐIVANJE URANIJUMA, Uticaj upotrebe fosfornih đubriva na kontaminaciju uranom, *Naučni skupovi Srpske akademije nauka i umetnosti LXXII-5* 31 (1993).
- [Bikit95] I. Bikit, M. Sarić, Lj. Čonkić, J. Slivka, M. Krmar, TRANSPORT PRIRODNIH RADIONUKLIDA IZ ZEMLJIŠTA U BILJKE, XVIII Jugoslovenski simpozijum za zaštitu od zračenja, Bečići, 1995, Zbornik radova, Jugoslovensko društvo za zaštitu od zračenja, 1995, p. 221.

- [Bikit98] I. Bikit, J. Slivka, Ž. Đurčić, N. Žikić, Lj. Čonkić, M. Vesković, I. Aničin, NISKOFONSKE KARAKTERISTIKE AKTIVNO ZAŠTIĆENOG HPGe SPEKTROMETRA, Simpozijum o merenjima i mernoj opremi, Beograd 1988, Zbornik radova, 1998, p. 751
- [Bikit98a] I. Bikit, J. Slivka, M. Vesković, M. Krmar, Lj. Čonkić, N. Žikić, Ž. Đurčić, LOW LEVEL γ -SPECTROMETRY FACILITY IN NOVI SAD, 3rd International Symposium, Interdisciplinary Regional Research, Novi Sad, 1998, Federal Ministry for Development, Science and Environment, University of Novi Sad
- [Dangić95] A. Dangić, GEOHEMIJSKI PROCESI U PRIRODI I RADIONUKLIDI; *Monografija: Jonizujuća zračenja iz prirode, Urednik M. Kovačević*, Beograd, 1995
- [Kljajić95] R. Kljajić, UGLJEVI I MINERALNA ĐUBRIVA KAO IZVOR TEHNOLOŠKOG POVEĆANJA PRIRODNE RADIOAKTIVNOSTI, *Monografija: Jonizujuća zračenja iz prirode, Urednik M. Kovačević*, Beograd, 1995
- [Krstonošić00] P. Krstonošić, J. Slivka, I. Bikit, Lj. Čonkić, M. Vesković, TESTIRANJE I PRIMENA PROGRAMA ZA ODREĐIVANJE EFEKTIVNOG PROSTORNOG UGLA U γ -SPEKTROMETRIJI, Kongres metrologa Jugoslavije, Novi Sad, 2000, Zbornik radova, 091
- [Manojlović89] 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).
- [Rostker98] B. Rostker, ENVIRONMENTAL EXPOSURE REPORT DEPLETED URANIUM IN THE GULF, Department of Defense, July 1998
- [Routti69] J. T. Routti, S.G.Prussin, *Nucl. Instrum and Methods* **72**, **125** (1969)
- [Sarić93] M. Sarić, B. Jocić, M. Kostić, N. Marković, B. Ljesov, I. Bikit, UTICAJ UPO- TREBE FOSFORNIH ĐUBRIVA NA SADRŽAJ URANA U ZEMLJIŠTU I BILJKAMA, *Naučni skupovi Srpske akademija nauka i umetnosti LXXII-5* 57 (1993)
- [Sarić96] M. Sarić, M. Stojanović, M. Babić, Lj. Čonkić, I. Bikit, CONCENTRATION OF URANIUM IN ROOT-CROPS, BULBOUS AND TUBEROUS PLANTS, First Balkan Symposium on Vegetables and Potatoes, 1996, p. 111
- [Slivka00] J. Slivka, I. Bikit, M. Vesković, Lj. Čonkić, GAMA SPEKTROMetriJA, SPECIJALNE METODE I PRIMENE, Univerzitet u Novom Sadu, 2000
- [Stanković95] S. Stanković, A. Stanković, NIVO AKTIVNOSTI PRIRODNIH RADIONUK- LIDA NA ODLAGALIŠTU JALOVINE KOLUBARSKIH UGLJENOKOPA, *Monografija: Jonizujuća zračenja iz prirode, Urednik M. Kovačević*, Beograd, 1995
- [WHO98] GUIDELINES FOR DRINKING WATER QUALITY, World Health Organization, Geneva, 1998

UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET
KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Redni broj:
RBR
Identifikacioni broj:
IBR
Tip dokumentacije:
TD
Tip zapisa: Tekstualni štampani materijal
TZ
Vrsta rada: Diplomski rad
VR
Autor: Mrđa Dušan, 215/96
AU
Mentor: Dr Jaroslav Slivka, red. prof. PMF
Novi Sad
MN
Naslov rada: Gama-spektrometrijsko određiva-
nje koncentracije osiromašenog uranijuma u
zemljištu
NR
Jezik publikacije: Srpski (latinica)
JP
Zemlja publikovanja: Jugoslavija
ZP
Uže geografsko područje: Vojvodina
UGP
Godina: 2001
GO
Izdavač: Autorski reprint
IZ
Mesto i adresa: PMF, Trg D. Obradovića 4
21000 Novi Sad
MA
Fizički opis rada:
FO
Naučna oblast: Fizika
NO
Naučna disciplina: Nuklearna fizika
ND
Predmetna odrednica/ključne reči:
osiromašeni uranijum, gama-spektrometrija
PO
Čuva se: biblioteka Instituta za fiziku, PMF
Novi Sad
ČU
Važna napomena:
VN

Izvod: U radu je gama-spektrometrijski izme-
rena koncentracija osiromašenog uranijuma u
zemljištu
IZ
Datum prihvatanja teme od strane veća:
DP
Datum odbrane:
DO
Članovi komisije:
Predsednik: Dr Ištvan Bikit, red. prof. PMF
Novi Sad
Članovi:
Dr Mira Terzić, red. Prof. PMF Novi Sad
Dr Jaroslav Slivka, red. Prof. PMF Novi Sad
KO

