

UNIVERZITET U NOVOM SADU PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET DEPARTMAN ZA FIZIKU



# Uticaj <sup>226</sup>Ra na merenje <sup>222</sup>Rn u vodi

- master rad -

Mentor: Doc. dr Jovana Nikolov Doc. dr Ivana Stojković Kandidat: Igor Marić

Novi Sad, 2018

# PREDGOVOR

Master rad je urađen pod mentrostvom dr Jovane Nikolov i dr Ivane Stojković. Eksperimentalni deo rada urađen je u Laboratoriji za nuklearnu fiziku Departmana za fiziku, Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu.

Zahvaljujem se dr Jovani Nikolov i dr Ivani Stojković za veliku pomoć i korisne savete tokom izrade ovog rada.

Zahvaljujem se porodici i prijateljima za podršku u radu.

Igor Marić

# SADRŽAJ

1. UVOD	5
2. RADIOAKTIVNI NIZOVI	6
3. SEKULARNA RADIOAKTIVNA RAVNOTEŽA	
3.1. Primer sekularne radioaktivne ravnoteže	13
3.2. Narušavanje ravnoteže u radioaktivnim nizovima	14
4. RADIOAKTIVNI GAS <sup>222</sup> Rn	15
4.1. Poreklo i karakteristike radona	15
4.2. Raspad i produkti radona <sup>222</sup> Rn	16
4.3. Zdravstveni aspekti izloženosti radonu	17
4.4. Radon u vodi	19
4.4.1. Radon u termalnim banjama	20
5. RADIOIZOTOP <sup>226</sup> Ra	23
5.1. Poreklo i karakteristike radijuma	23
5.2. Raspad i produkti radijuma <sup>226</sup> Ra	24
5.3. Radijum <sup>226</sup> Ra u vodi	25
6. MERNE METODE ZA MERENJE <sup>222</sup> Rn U VODI	
6.1. Tečna scintilaciona spektroskopija (LSC)	
6.1.1. Karakteristike scintilatora	
6.1.2. Vrste scintilatora	
6.1.3. Scintilacioni procesi u organskim scintilatorima	
6.1.4. Komponente LSC koktela	
6.1.5. Fotomultiplikatori	
6.1.6. Procesi koji ometaju LSC detekciju	
6.1.7. Quantulus 1220 <sup>тм</sup>	
6.1.7.1. Detektorska zaštita	
6.1.7.2. Višekanalni analizatori (MCA – MultiChannel Analyzer)	
6.1.7.3. Analiza impulsa u Quantulus-u	
6.1.7.4. Korekcija prigušenja u Quantulus-u	
7. OPIS EKSPERIMENTA	40
7.1. Priprema uzoraka	40
7.2. Metoda merenja	40

7.2.1. Kalibracija tečnog scintilacionog detektora	41
7.2.2. Uslovi merenja	45
7.3. Rezultati merenja i diskusija	46
8. ZAKLJUČAK	60
9. LITERATURA	62
10. BIOGRAFIJA	64

### 1. UVOD

Radioekologija je grana nauke koja se bavi proučavanjem prirodne radioaktivnosti. Radioekološka istraživanja predstavljaju osnovu za procenu doza i procenu posledica radioaktivne kontaminacije na ljudsko zdravlje.

Značajan doprinos primljenoj dozi zračenja poteklog iz prirode daje radioizotop radona, <sup>222</sup>Rn. U prirodi se nalazi u formi inertnog gasa, a prisutan je u vodi, zemljištu, podrumima i zidovima zgrada, kao i u građevinskom materijalu. Period poluraspada radona <sup>222</sup>Rn iznosi  $T_{1/2} = 3,8253(3)$  dana. U organizam dospeva inhalacijom ili ingestijom. Štetnost radona <sup>222</sup>Rn ogleda se u tome što se raspada na kratkoživeće alfa emitere, koji, kada se unesu, predaju svu svoju energiju unutrašnjim organima čime mogu da ugroze DNK strukturu i time izazovu kancerogena oboljenja.

<sup>222</sup>Rn je potomak radijuma <sup>226</sup>Ra, primordijanog radionuklida. Nalazi se u čvrstom stanju, u prirodi je prisutan u stenama i u vodi koja kroz njih prolazi. Period poluraspada ovog radionuklida iznosi  $T_{1/2} = 1600(7)$  god.

Metode merenja <sup>222</sup>Rn i radijuma <sup>226</sup>Ra rade na istom principu. Vrši se detekcija zračenja poteklog od njihovih potomaka, nakon čega se primenom sekularne radioaktivne ravnoteže određuju vrednosti koncentracije aktivnosti ova dva radionuklida. S obzirom na to da se radijum <sup>226</sup>Ra raspada na <sup>222</sup>Rn, u eksperimentalnim merenjima koncentracije aktivnosti radona <sup>222</sup>Rn u vodi može doći do pogrešnih rezultata ukoliko je u vodi prisutan i radijum <sup>226</sup>Ra.

Tema ovog rada bila je da se ispitaju mogućnosti i ograničenja metode merenja <sup>222</sup>Rn u vodi tečnim scintilacionim detektorom kada je u vodi koja prirodno sadrži povišenu koncentraciju aktivnosti radona (kao što je to slučaj kod prirodne izvorske vode sa Školske česme u Niškoj Banji) prisutan i <sup>226</sup>Ra u određenoj koncentraciji. Da bi se to postiglo u uzorcima prirodne vode sa pomenutog izvora u kojima je prethodno izmerena koncentracija aktivnosti <sup>222</sup>Rn, dodata je određena zapremina vodenog standarda <sup>226</sup>Ra. Uzorci izvorske vode su izmereni odmah nakon pripremanja, kao i nekoliko puta do potpunog raspada radona. S druge strane, uzorci izvorske vode koji su spajkovani <sup>226</sup>Ra standardom, mereni su odmah nakon pripreme, zatim u periodu tokom postizanja sekularne radioaktivne ravnoteže između <sup>226</sup>Ra i <sup>222</sup>Rn (za šta je potrebno oko 30 dana), kao i nakon dostignute ravnoteže. Uzorci su pripremani sa 4 različita scintilaciona koktela, pa su na taj način ispitane i mogućnosti merenja <sup>222</sup>Rn i/ili <sup>226</sup>Ra u vodi LSC metodom.

U prvom delu rada opisani su radioktivni nizovi primordijalnih radionuklida. Nakon toga sledi obrazloženje pojma i značaja sekularne radioaktivne ravnoteže. Dati su opisi ispitivanih prirodnih radioizotopa, radona <sup>222</sup>Rn i radijuma <sup>226</sup>Ra. Potom, sledi opis merne metode tečne scintilacione spektroskopije (LSC) korišćene za ispitivanje uzoraka vode. Na kraju rada, predstavljeni su rezultati ispitivanja, diskusija i preporuke za dalja istraživanja.

# 2. RADIOAKTIVNI NIZOVI

Radioaktivni niz predstavlja niz nuklida koji nastaju uzastopnim radioaktivnim raspadima [Hansman, 2011]. Početni radionuklid svakog od nizova se naziva rodonačelnik. Svaki od nizova nosi naziv po svom rodonačelniku. Rodonačelnik niza, pored toga što je početni, ujedno poseduje i najduži period poluraspada, kao i najveću masu u nizu. Niz se završava stabilnim izotopom.

U prirodi su otkrivena tri radioaktivna niza: uranijumov, torijumov i aktinijumov. U sva tri prirodna radioaktivna niza prisutan je po jedan izotop radona. Nizovi su potpuno nezavisni i ne ukrštaju se. Karakteristika krajnjih, stabilnih nuklida svih nizova je to što svi sadrže magične brojeve protona, 82, i magične brojeve neutrona, 126, ili oba.

Fizičke karakteristike prirodnih radionuklida, uključujući period poluraspada, kao i dominantni tip raspada radionuklida dati su u tabeli 1 [Forkapić, 2013].

#### Uranijumov niz

Uranijumov niz počinje sa <sup>238</sup>U, čiji je period poluraspada  $T_{1/2} = 4,468 \times 10^9$  godina. Nakon niza alfa i beta raspada, dobija se stabilni izotop <sup>206</sup>Pb. Prikaz uranijumovog niza dat je na slici 1.

Uočena je pravilnost da se atomska masa svakog izotopa ovog niza može napisati u obliku 4n+2, pri čemu je n prirodan broj. Iz ovog razloga uranijumov niz se često naziva i "4n+2" niz [Hansman, 2011].

#### Aktinijumov niz

Aktinijumov niz počinje izotopom <sup>235</sup>U, čiji je period poluraspada  $T_{1/2} = 7,038 \times 10^8$ godina. Ime ovog niza potiče od toga što se <sup>235</sup>U nekada nazivao aktin-uran. Uranijumu <sup>235</sup>U je prethodio <sup>239</sup>Pu, koji se do danas raspao i ne postoji u prirodi. Niz se završava stabilnim izotopom <sup>207</sup>Pb. U aktinijumovom nizu ima 7 alfa-raspada i 4 beta-raspada. Prikaz aktinijumovog niza dat je na slici 2.

Mase svih članova aktinijumovog niza zadovoljavaju izraz 4n+3.

#### Torijumov niz

Torijumov niz započinje sa <sup>232</sup>Th, čiji je period poluraspada  $T_{1/2} = 1,405 \times 10^{10}$  godina. Torijumov niz se završava stabilnim izotopom <sup>208</sup>Pb. Nekada, ovaj niz je počinjao <sup>252</sup>Cf, međutim, svi članovi niza koji prethode torijumu su se do danas raspali i ne postoje u prirodi. Prikaz torijumovog niza dat je na slici 3.

Atomske mase članova ovog niza zadovoljavaju izraz 4n.

#### Neptunijumov niz

Logično je bilo očekivati i pronalazak niza "4n+1". Ovaj niz je u prošlosti postojao i počinjao je izotopom kalifornijuma <sup>249</sup>Cf, a završavao se stabilnim izotopom bizmuta <sup>209</sup>Bi. Naziv "neptunijumov niz" je dobio zato što je izotop ovog niza sa najdužim vremenom poluraspada upravo bio neptunijum <sup>237</sup>Np. Tokom vremena, svi članovi neptunijumovog niza su se raspali i ovaj niz u prirodi više ne postoji. Precizno govoreći, postoji još samo njegov poslednji stupanj. Nedavno je otkriveno da <sup>209</sup>Bi nije stabilan, već da se i on raspada alfaraspadom dajući <sup>205</sup>Tl. Vreme poluraspada izotopa <sup>209</sup>Bi iznosi T<sub>1/2</sub> =  $1,9 \times 10^{19}$  godina.

Govoreći o radioaktivnim nizovima, najčešće se misli na nizove primordijalnih radionuklida (nuklida nastalih pri formiranju planete Zemlje). Pored ovih nizova, u prirodi se mogu naći i drugi, znatno kraći nizovi (npr. niz<sup>14</sup>C). Rodonačelnici ovih nizova obično nastaju pod uticajem kosmičkog zračenja [Hansman, 2011].

Radionuklid	Simbol	Period poluraspada T <sub>1/2</sub>	Dominantni raspad
Kalijum 40	40K	1.28x10 <sup>9</sup> god	Beta (89.3%), EC <sup>1</sup> (10.7%)
Rubidijum 87	<sup>87</sup> Rb	4.75x10 <sup>10</sup> god	Beta (100%)
Lantan 138	<sup>138</sup> La	1.05x10 <sup>11</sup> god	Beta (33.6%), EC (66.4%)
Samarijum 147	147Sm	1.06x10 <sup>11</sup> god	Alfa (100%)
Lutecijum 176	170Lu	3.73x10 <sup>10</sup> god	Beta (100%)
Niz uranijuma <sup>238</sup> U:			27 m
Uranijum 238	238U	4.47x10 <sup>9</sup> god	Alfa (100%)
Torijum 234	2341h	24.10 dana	Beta (100%)
Protoaktinijum 234m	<sup>234m</sup> Pa	1.17 min	Beta (99.8%), IT <sup>2</sup>
Uranijum 234	234U	2.45x10 <sup>5</sup> god	Alfa (100%)
Torijum 230	230Th	7.54x10 <sup>4</sup> god	Alfa (100%)
Radijum 226	226Ra	1600 god	Alfa (100%)
Radon 222	<sup>222</sup> Rn	3.824 dana	Alfa (100%)
Polonijum 218	<sup>218</sup> Po	3.05 min	Alfa (99.98%), Beta(0.02%)
Olovo 214	<sup>214</sup> Pb	26.8 min	Beta(100%)
Bizmut 214	<sup>214</sup> Bi	19.9 min	Alfa (0.02%), Beta(99.98%)
Polonijum 214	<sup>214</sup> Po	164 μs	Alfa (100%)
Olovo 210	<sup>210</sup> Pb	22.3 god	Beta (100%)
Bizmut 210	<sup>210</sup> Bi	5.013 dana	Beta (100%)
Polonijum 210	<sup>210</sup> Po	138.4 dana	Alfa (100%)
Olovo 206	<sup>206</sup> Pb	stabilan	
Niz torijum <sup>232</sup> Th:			
Torijum 232	<sup>232</sup> Th	1.405x10 <sup>10</sup> god	Alfa (100%)
Radijum 228	<sup>228</sup> Ra	5.75 god	Beta(100%)
Aktinijum 228	228 Ac	6.15 h	Beta(100%)
Torijum 228	22816	1.912 god	Alfa(100%)
Radijum 224	<sup>224</sup> Ra	3.66 dana	Alfa(100%)
Radon 220	<sup>220</sup> Rn	55.6 s	Alfa(100%)
Polonijum 216	<sup>210</sup> Po	0.145 s	Alfa(100%)
Olovo 212	<sup>212</sup> Pb	10.64 h	Beta(100%)
Bizmut 212	Bi	60.55 min	Alfa (36%), beta (64%)
Polonijum 212	<sup>212</sup> Po	0.299 μs	Alfa(100%)
Talijum 208	208Tl	3.053 min	Beta(100%)
Olovo 208	<sup>208</sup> Pb	stabilan	
Niz uranijuma <sup>239</sup> U	1 332 1		
Uranijum 235	235U	7.038 x 10° god	Alfa (100%)
Torijum 231	<sup>231</sup> Th	25.52 h	Beta(100%)
Protoaktinijum 231	<sup>231</sup> Pa	32760 god	Alfa (100%)
Aktinijum 227	Ac	21.77 god	Alfa (1.4%), beta (98.6%)
Torijum 227	22711	18.72 dana	Alfa (100%)
Francijum 223	Fr	21.8 min	Beta(100%)
Radijum 223	223Ra	11.44 dana	Alfa (100%)
Radon 219	Rn	3.96 s	Alfa (100%)
Polonijum 215	Po	1.781 ms	Alfa (100%)
Olovo 211	Pb	36.1 min	Beta(100%)
Bizmut 211	Bi	2.14 min	Alfa (99.7%), beta (0.3%)
Talıjum 207	207TI	4.77 min	Beta(100%)
Olovo 207	Pb	stabilan	

Tabela 1. Fizičke karakteristike primordijalnih radionuklida

<sup>1</sup> EC – zahvat elektrona,

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> IT – interni prelaz



Slika 1. Uranijumov niz



Slika 2. Aktinijumov niz



Slika 3. Torijumov niz

# 3. SEKULARNA RADIOAKTIVNA RAVNOTEŽA

Radioizotopi se u radioaktivnim nizovima sukcesivno raspadaju sve dok se ne dobije stabilni izotop. Postavlja se problem određivanja aktivnosti pojedinih radionuklida, odnosno broja atoma N, ukoliko su poznati period poluraspada  $T_{1/2}$  ili konstanta raspada  $\lambda$  posmatranog radionuklida [Forkapić, 2013].

Rodonačelnici prirodnih radioaktivnih nizova poseduju izuzetno duge periode poluraspada, nekoliko redova veličine dužih od perioda poluraspada njihovih potomaka sa najdužim periodima poluraspada. Ova činjenica kao posledicu ima uspostavljanje *sekularne radioaktivne ravnoteže* [Forkapić, 2013].

Sekularna radioaktivna ravnoteža podrazumeva postizanje približno jednake aktivnosti jezgra pretka i jezgra potomka, ukoliko važi pretpostavka:

$$T_1 \gg T_2 , \qquad (3.1)$$

pri čemu je  $T_1$  period poluraspada pretka, a  $T_2$  period poluraspada potomka.

U slučaju kada je t = 0, samo jezgro predak (1) postoji, aktivnost jezgara potomka (2) se povećava prema sledećoj formuli:

$$A = \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1 \left( 1 - e^{-\lambda_2 t} \right), \tag{3.2}$$

gde je  $\lambda_1$  kontanta raspada jezgra pretka,  $N_1$  broj jezgara pretka,  $\lambda_2$  kontanta raspada jezgra potomka, a  $N_2$  broj jezgara potomka.

Nakon 6 do 7 perioda poluraspada jezgra potomka aktivnosti oba radionuklida se mogu smatrati priblično jednakim, što predstavlja sekularnu radioaktivnu ravnotežu:

$$\lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1 \,. \tag{3.3}$$

Period poluraspada pretka se može odrediti ukoliko je poznat period poluraspada potomka, na osnovu jednakosti aktivnosti u radioaktivnom nizu [Forkapić, 2013]:

$$\frac{N_1}{\left(T_{1/2}\right)_1} = \frac{N_2}{\left(T_{1/2}\right)_2} = \dots = \frac{N_n}{\left(T_{1/2}\right)_n}.$$
(3.4)

Apsolutna, ukupna aktivnost je jednaka zbiru aktivnosti pretka i potomka i izražava se kao [Forkapić, 2013]:

$$A_{tot} = \lambda_1 N_1 + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1 (2 - e^{-\lambda_2 t}) .$$
(3.5)

Prema tome, apsolutna aktivnost se povećava dva puta.

Na grafiku 1. dat je porast aktivnosti jezgra potomka u zavisnosti od proteklog vremena, u ovom slučaju izraženog na x osi u broju perioda poluraspada jezgra potomka. Može se videti

da se sekularna radioaktivna ravnoteža uspostavlja nakon 6 do 7 perioda poluraspada jezgra potomka.



Grafik 1. Uspostavljanje sekularne radioaktivne ravnoteže

### **3.1. Primer sekularne radioaktivne ravnoteže**

U zamišljenom sistemu se nalaze uranijum  $^{238}$ U i njegov prvi potomak, torijum  $^{234}$ Th. Period poluraspada uranijuma  $^{238}$ U iznosi  $T_{1/2} = 4,47 \times 10^9$  godina, dok period poluraspada torijuma  $^{234}$ Th iznosi  $T_{1/2} = 24,1$  dan.

Neka dati sistem originalno sadrži samo <sup>238</sup>U, sa ukupnom aktivnošću od oko 1 kBq. Nakon sedam perioda poluraspada jezgra potomka (torijuma <sup>234</sup>Th)  $T_{1/2} = 24,1$  dan, odnosno 170 dana, posmatrani sistem će sadržati takođe i torijum <sup>234</sup>Th aktivnosti 1 kBq.

$$\lambda_{Th-234} N_{Th-234} = \lambda_{U-238} N_{U-238} \tag{3.6}$$

S obzirom na to da je razlika između perioda poluraspada ova dva radionuklida ogromna, broj jezgara <sup>238</sup>U koji se raspao, a samim tim i aktivnost <sup>238</sup>U će ostati praktično nepromenjeni.

# 3.2. Narušavanje ravnoteže u radioaktivnim nizovima

Kada izotopni sistem, u ovom slučaju prirodni radioaktivni niz, nije izlagan spoljašnjim uticajima, može se smatrati zatvorenim. Aktivnosti svih radionuklida u nizu su iste, te je moguće odrediti koncentraciju predaka preko izmerenih intenziteta  $\gamma$  zračenja bilo kog potomka.

Sekularna radioaktivna ravnoteža se može narušiti kada jezgra preci ili produkti njihovog raspada uđu u sistem ili ga napuste, odnosno kada sistem postane otvoren, tokom vremenskog perioda uporedivim sa periodom poluraspada jezgra potomka i na udaljenosti uporedivoj sa veličinom sistema. Glavni pocesi koji dovode do narušavanja radioaktivne ravnoteže između prirodnih radionuklida podeljeni su u tri glavne kategorije: gubitak uranijuma, povećavanje količine uranijuma i složena interakcija između ova dva procesa [Papadopoulos et al, 2013].

Kod članova niza sa dugim periodom poluraspada (torijuma <sup>230</sup>Th i radijuma <sup>226</sup>Ra u uranijumovom nizu i protaktinijuma <sup>231</sup>Pa u aktinijumovom nizu) moguće je da dođe do narušavanja ravnoteže usled geohemijskih procesa. <sup>226</sup>Ra se nalazi u svim mineralima, rudama i ostalim uzorcima koji sadrže uranijum. Ukoliko je uspostavljena sekularna radioaktivna ravnoteža uranijuma <sup>238</sup>U i radijuma <sup>226</sup>Ra, na 1g uranijuma dolazi 3.4×10<sup>-7</sup> g radijuma. Mada, radijum se u prirodnim geohemijskim procesima raspada i ispira iz minerala i ruda urana, rastvara se u vodi, migrira i gradi sekundarne minerale, tako da je čest slučaj da se u uzorku nalazi manje ili više radijuma nego što se poklapa sa njegovom radioaktivnom ravnotežom sa uranijumom, pa time izmerena aktivnost radijuma i potomaka ovog radioizotopa ne odražava stvarni sadržaj uranijuma <sup>238</sup>U u uzorku.

S obzirom na navedene moguće slučajeve, pre određivanja koncentracije uranijuma u uzorcima zemlje potrebno je proveriti da li je postignuta sekularna radioaktivna ravnoteža, odnosno da li je aktivnost <sup>226</sup>Ra jednaka aktivnosti rodonačelnika uranijumovog niza <sup>238</sup>U [Forkapić, 2013].

Stanje narušenja radioaktivne ravnoteže je nestabilno stanje i vreme potrebno za ponovno uspostavljanje radioaktivne ravnoteže zavisi od brzine raspada radionuklida. U cilju provere prisustva radioaktivne ravnoteže u izotopnom sistemu, aktivnost jezgra pretka sa dugim periodom poluraspada se dovodi u vezu sa jednim od njegovih potomaka sa znatno kraćim periodom poluraspada [Papadopoulos et al, 2013].

Ukoliko izotopni sistem opet postane zatvoren, doći će do uspostavljanja radioaktivne ravnoteže u periodu jednakom pet ili šest perioda poluraspada jezgra potomka. U suprotnom, neće doći do ponovnog uspostavljanja sekularne radioaktivne ravnoteže [Papadopoulos et al, 2013].

# 4. RADIOAKTIVNI GAS<sup>222</sup>Rn

# 4.1. Poreklo i karakteristike radona

Radon je plemeniti radioaktivni gas. Nema miris, kao ni ukus i bezbojan je. Inertan je gas, isparljiv i hemijski nereaktivan. Najteži je plemeniti gas u periodnom sistemu elemenata. S obzirom na to da je gušći od vazduha, zadržava se najčešće na maloj visini, u prostorijama gde je loša ventilacija, kao i u podrumima [CNSC, 2011]. Rastvorljiv je u vodi, gde se može naći kao posledica raspada radijuma prisutnog u okolnim stenama i zemljištu [Nikolov et al, 2012].

Radon ima 27 do sada poznatih izotopa. Izotopi ovog radionuklida nastaju prilikom raspada izotopa radijuma iz uranijumovog, torijumovog niza i aktinijumovog niza. Na slici 4. data je šema radioaktivnog raspada <sup>226</sup>Ra, odnosno <sup>222</sup>Rn i njegovih potomaka.



Slika 4. Šema radioaktivnog raspada Ra-226. Potomci Rn-222.

U uranijumovom nizu nastaje izotop radona <sup>222</sup>Rn  $\alpha$ -raspadom radijuma <sup>226</sup>Ra. Period poluraspada ovog radionuklida iznosi T<sub>1/2</sub> = 3,824 dana [Stojković, 2015]. Iako postoji više izotopa radona, uobičajeno je da se pod imenom "radon" podrazumeva radioizotop <sup>222</sup>Rn.

U torijumovom nizu nastaje izotop radona <sup>220</sup>Rn, kratkoživeći radionuklid, često nazivan "toron". Period poluraspada torona iznosi  $T_{1/2} = 54,5$  s.

U aktinijumovom nizu nastaje izotop radona <sup>219</sup>Rn, koji se naziva "aktinon". Zastupljenost ovog radionuklida u prirodi je veoma niska, te je doprinos <sup>219</sup>Rn zračenju zanemarljiv. Period poluraspada aktinona iznosi  $T_{1/2} = 3,92$  s.

Na slici 5. prikazan je radon kao najveći izvor jonizujućeg zračenja. Godišnja efektivna doza zračenja poteklog od radona iznosi oko 1,6 mSv [Nikolov et al, 2012].



Slika 5. Izvori zračenja

# 4.2. Raspad i produkti radona <sup>222</sup>Rn

<sup>222</sup>Rn je alfa emiter. Radon se raspada na nekoliko kratkoživećih potomaka (polonijum <sup>218</sup>Po, olovo <sup>214</sup>Pb, bizmut <sup>214</sup>Bi i polonijum <sup>214</sup>Po) koji su i sami radioaktivni [Nikolov et al, 2012]. Pri transformaciji, jezgra emituju odgovarajuće jonizujuće zračenje: α čestice, β čestice ili γ zrake, ili kombinacije čestica i zraka [Forkapić, 2013].

Alfa raspadom, radon <sup>222</sup>Rn se raspada na polonijum <sup>218</sup>Po. Energija emitovane  $\alpha$  čestice iznosi 5,49 MeV. Atomi ovog metala se lepe za čestice prašine, mogu se taložiti na površine, npr. zidove prostorija ili unutrašnjost pluća, ukoliko sa njima dođu u kontakt. Period poluraspada polonijuma <sup>218</sup>Po iznosi T<sub>1/2</sub> = 3,05 minuta. Poput radona, <sup>218</sup>Po je  $\alpha$  emiter i raspada se na olovo <sup>214</sup>Pb, uz emisiju  $\alpha$  čestice energije 6 MeV. Olovo <sup>214</sup>Pb je u čvrstom stanju. Period poluraspada ovog radionuklida iznosi T<sub>1/2</sub> = 26,8 minuta. Raspada se emisijom  $\beta$  čestice i  $\gamma$  zraka na bizmut <sup>214</sup>Bi. Bizmut <sup>214</sup>Bi se takođe nalazi u čvrstom stanju. Period poluraspada <sup>214</sup>Bi iznosi T<sub>1/2</sub> = 19,8 minuta. Raspadom <sup>214</sup>Bi nastaje polonijum <sup>214</sup>Po. Period poluraspada <sup>214</sup>Po iznosi T<sub>1/2</sub> = 164 ms. <sup>214</sup>Po se raspada emisijom  $\alpha$  čestice, čija energija iznosi 7,69 MeV, na olovo <sup>210</sup>Pb [Forkapić, 2013].

Pored toga što se grupišu u klastere malih dijametara od 0,5 nm, često se pripajaju molekulima vode ili drugim molekulima u vazduhu dimenzija od 0,5 do 5 nm. U zavisnosti od koncentracije jona u vazduhu i vlažnosti vazduha, može doći do delimične neutralizacije nepripojenih radonovih potomaka rekombinacijom sa negativnim jonima, ili pripajanjem česticama aerosola pri čemu se formiraju pripojeni radonovi potomci (dijametra od 20 do 500 nm) [Stojković, 2015].

# 4.3. Zdravstveni aspekti izloženosti radonu

Zbog svog kratkog perioda poluraspada, jezgra potomci radona emituju zračenje brže i predstavljaju veću pretnju po zdravlje od samog radona. Produkti raspada radona su naelektrisane čestice i lako se vežu sa česticama prašine. Ovako vezane čestice (takođe i one slobodne) udisanjem lako dospevaju u pluća. Polonijum <sup>218</sup>Po i <sup>214</sup>Po u najvećoj meri doprinose riziku od štetnog uticaja na organizam jer emituju alfa čestice, koje imaju veću relativnu biološku efikasnost (sposobnost da izazovu neku biološku promenu) od beta i gama zračenja. Alfa zračenje dovodi do iritacije i oštećenja ćelija pluća [CNSC, 2011]. Jezgra potomci radona doprinose oko 60% od ukupne unutrašnje ekvivalentne doze izazvane udahnutim radionuklidima [Galán López et al, 2004].

<sup>222</sup>Ra je prepoznat kao uzrok radijacione štete koji prouzrokuje pojavu kancerogenih oboljenja pluća među rudarima. Od 1970-ih godina javljalo se sve više dokaza o štetnom uticaju radona i u ostalim životnim i radnim sredinama [Nikolov et al, 2012].

Epidemiološka ispitivanja su potpomogla ispitivanje rizika od kancerogenih oboljenja pluća koja izazivaju radonovi potomci. Uvođenjem mera zaštite, izloženost radonovim potomcima se značajno smanjila. Na slikama 6. i 7. prikazan je pad doze zračenja prouzrokovanog pomenutim radionuklidima [CNSC, 2011].

U Evropi, godišnja efektivna doza potekla iz svih izvora radijacije u životnoj okolini je procenjna na 3.3 mSv, od čega doze u zatvorenom prostoru koje potiču od radona (<sup>222</sup>Rn), torona (<sup>220</sup>Rn) i njihovih kratkoživećih potomaka iznose 1.6 mSv. Ispitivanja nivoa radona u zatvorenom prostoru u Evropskoj uniji pokazuju da je uzrok 20000 smrtnih slučajeva zbog kancera pluća upravo radon, što čini 9% od svih uzroka plućnog kancera, kao i 2% od uzroka kancera uopšte unutar Evropske unije [Nikolov et al, 2012].

U radonskim banjama, radon <sup>222</sup>Rn koji se smatra kancerogenim u atmosferi rudnika, mlinova i ostalih građevina, koristi se u povišenim količinama za namerno izlaganje dece i odraslih u medicinske svrhe [Nikolov et al, 2012]. Ova paradoksalna situacija u velikoj meri je uzrokovana nerešenim pitanjem uticaja niskih doza jonizujućeg zračenja na čovečiji organizam. Radon i njegovi produkti raspada koji su prisutni u zatvorenom okruženju banjskih objekata identifikovani su kao dodatni izvor radijacije kako za korisnike banja, tako i za zaposlene [Nikolov et al, 2012].

Lekari, medicinske sestre i tehničari, usluga u kupatilima, kao i radnici koji rade na održavanju sistema mogu biti izloženi povišenim koncentracijama radonovih potomaka tokom radnog vremena. Primećena su pogoršanja zdravlja radnika i stanovnika koji žive ili rade u prostorijama sa lošom ventilacijom u radonskim banjama, kao što su povećana učestalost hromozomskih aberacija i pojava neuobičajenih ćelija u uzorcima sputuma. Postoje dokazi da je rizik izlaganja pacijenta radonskoj terapiji u obliku termalnih kupki manji od godišnjeg izlaganja prirodnom zračenju. U slučaju terapije udisanjem ili ingestijom vode za piće, rezultujuće doze mogu biti značajno više nego pri boravku u vodi, ali rizik kom su pacijenti izloženi je uglavnom relativno mali u odnosu na ukupnu godišnju primljenu dozu. Ukoliko dođe do izlaganja u nepoželjnim uslovima kao što je loša ventilacija, rezultijuća opasnost može biti neprihvatljivo velika [Nikolov et al, 2012].



Figure 3: Average Radon Progeny Exposures from 1940 to 1970

Slika 6. Prosečna izloženost radonovim potomcima od 1940. do 1970. godine



Figure 4: Average Radon Progeny Exposures from 1970 to 2000

Slika 7. Prosečna izloženost radonovim potomcima od 1970. do 2000. godine

### 4.4. Radon u vodi

Pojava radona u vodi je posledica ispiranja zemljišta u kojem se raspadaju jezgra <sup>226</sup>Ra. Prolaskom podzemne vode kroz stene bogate radijumom dolazi do sakupljanja produkata raspada radijuma, a među njima i <sup>222</sup>Rn. Nakon izbijanja podzemne vode na površinu, dolazi do naglog pada koncentradije radona u vodi, usled njenog kontakta sa okolnim vazduhom, pri čemu radon može lako da "pobegne" iz vode. Problem se javlja kada se ova voda bogata radonom koristi za piće, što je uobičajeno u nekim naseljenim mestima. Vreme koje protekne od sakupljanja radona do konzumacije vode nije dovoljno da bi se izbegla opasnost po zdravlje konzumenata. U cilju utvrđivanja bezbednosti vode za piće, od velike je važnosti vršiti proveru koncentracije radona u vodama na izvorištima i javnim česmama [Todorović et al, 2014].

Udisanje <sup>222</sup>Rn rastvorenog i emitovanog iz vode za piće se smatra uzrokom 89% kancerogenih oboljenja izazvanih radonom iz vode [Todorović et al, 2014].

Ingestija vode sa povišenim sadržajem radona predstavlja preostalih 11% uzroka kancera izazvanih ovim radionuklidom prisutnim u vodi. Radon i njegovi potomci, unešeni na ovaj način u telo, mogu izazvati kancer želuca i kancer debelog creva i jetre. Radon u vodi izaziva oko 5% svih kancera izazvanih ovim radionuklidom, pri čemu mnogo veći uticaj vrši radon prisutan u zatvorenom prostoru koji potiče iz zemljišta i građevinskih materijala.

Radon ima niske koncentracije aktivnosti u površinskim vodama zbog njegove isparljivosti. Koncentracije aktivnosti radona u površinskim vodama iznose manje od 4 Bq l<sup>-1</sup>, a koncentracije aktivnosti radona dosežu sve do 10<sup>4</sup> Bq l<sup>-1</sup> u podzemnim vodama [Stojković, 2015]. Prosečna vrednost koncentracije radona u podzemnim vodama je 20 Bq l<sup>-1</sup> [Stojković, 2015], ali su moguće i varijacije od 3-80000 Bq l<sup>-1</sup>. Znatne varijacije koncentracije aktivnosti radona u podzemnim vodama su moguće i na malim područjima kao posledica lokalnih razlika u geologiji zemljišta, što utiče na distribuciju radona. Često nije moguće uspostavljanje konzistentne veze između izmerenih koncentracija aktivnosti <sup>222</sup>Rn u podzemnim vodama i <sup>226</sup>Ra u podzemnim vodama ili stenovitom tlu u malom području [Stojković, 2015].

Rastvorljivost radona u vodi je relativno dobra i on može da migrira sa podzemnom vodom duž pukotina i raseda, u zavisnosti od brzine kretanja vode. Uticaj na migraciju radona iz podzemnih voda na površinu zemlje vrše: prisustvo <sup>226</sup>Ra, <sup>238</sup>U, litološke karakteristike područja, rasedi, pukotine i putanja cirkulisanja podzemne vode, prisustvo CO<sub>2</sub> ili drugih rastvorenih gasova, temperatura i pritisak, hidrogeološka svojstva stena (poroznost, permeabilnost) [Stojković, 2015].

Najbitniji faktor koji utiče na izvore i prenos radona u zemljištu, stenama i vodama su geološke karakteristike. Različita distribucija radionuklida u različitim geološkim formacijama je posledica promenljivih procesa taloženja u sedimentnim stenama ili procesa formiranja magmatskih i metamorfnih stena [Stojković, 2015]. Vrsta minerala bogatih radijumom i uranijumom utiče na otpuštanje radona iz stena i zemljišta [Stojković, 2015].

Frakcija ukupne količine radona generisane raspadom radijuma koja se oslobađa iz zemljišta i dospeva u pore medija nazvana je *koeficijent emanacije radona*. Vrednosti ove veličine kreću se od 5 do 70 %. Srednja vrednost koeficijenta emanacije radona za zemljište iznosi 40 %, za stene 5 %, za granit 6 - 33 %, gnajs 1 - 14 %, granodiorit 17 - 40 %. Koeficijenti emanacije radona nekih minerala iznose: 0.46 - 1.04 % za cirkon, 0,29 - 4,17 % za monacit, 16,8 - 22,9 % za cerit, 0,3 - 0,76 za uranit, 1,34 - 22,5 % za torit [Todorović et al, 2015]. Povišene koncentracije radona obično se nalaze u podzemnim vodama koje dolaze u kontakt sa granitnim stenama, glincima, gnajsom, škrljcima, a često i krečnjakom, preščarama i laporcima [Stojković, 2015].

Radon je u najvišim koncentracijama prisutan na području granitnih stena i škriljaca sa visokom koncentracijom uranijuma.

Najviše koncentracije radionuklida izmerene su u magmatskim stenama (granit). Koncentracija radionuklida je pod uticajem hidrotermalnih, pneumatolitskih i drugih postmagmatskih procesa koji dovode do sekundarnih izmena stena. Zbog ovakvih izmena, radionuklidi su često prisutni u okolini tektonske zone [Todorović et al, 2015]. Primećena je povećana prisutnost radona u vodama upravo u okolini tektonskih zona, zbog migracije radona kroz pukotine i prelome u zemlji [Stojković, 2015].

Bez obzira na to što je <sup>222</sup>Rn potomak <sup>226</sup>Ra i <sup>238</sup>U, analize voda u Srbiji ukazuju na visoke sadržaje <sup>222</sup>Rn, ali ne i visoke koncentracije <sup>226</sup>Ra u <sup>238</sup>U i obrnuto, što navodi na to da se korelacija između koncentracija ovih radionuklida ne može uspostaviti [Todorović et al, 2015]. Jedan od razloga za ovakve nalaze je taj što su <sup>226</sup>Ra i <sup>238</sup>U mnogo manje rastvorljivi u podzemnim vodama od <sup>222</sup>Rn.

Primera radi, u istraživanju sprovedenom 2015. godine, na izvoru Cerska Slatina, izmerena je najviša koncenracija aktivnosti <sup>222</sup>Rn u Srbiji i kreće se od 350 do 3600 Bq l<sup>-1</sup>, dok je sadržaj <sup>226</sup>Ra konstantan i iznosi ~ 0,7 Bq l<sup>-1</sup>, a sadržaj <sup>238</sup>U je nizak [Stojković, 2015].

<sup>222</sup>Rn u podzemnoj vodi predstavlja značajan indikator njenog porekla sa hidrogeološkog aspekta, s obzirom na to da vode sa visokim koncentracijama <sup>222</sup>Rn uglavnom imaju visoku mineralizaciju, kao i povećanu koncentraciju CO<sub>2</sub> u odnosu na podzemne vode u okolini. S obzirom na to da <sup>222</sup>Rn može služiti kao indikator zemljotresa, praćenje <sup>222</sup>Rn u podzemnim vodama se vrši i prilikom istaživanja rudnika i mineralnih nalazišta ruda (ukoliko dođe do otvaranja većih pukotina u stenama kao posledice povećanja pritiska, sadržaj <sup>222</sup>Rn u podzemnoj vodi će naglo porasti) [Todorović et al, 2015].

#### 4.4.1. Radon u termalnim banjama

Linearna veza visokih doza i prouzrokovanih kancerogenih oboljenja se ne može primeniti i u slučaju niskih doza, te istraživanja pokazuju da izlaganje niskim dozama zračenja može dovesti do pozitivnih uticaja na mehanizme DNK reparacije i detoksikacije, imuni sistem i njegov odgovor na razvoj kancerogenih ćelija. Radonske banje su brojne u Evropi (Nemačkoj, Austriji, Mađarskoj, Rumuniji, Češkoj, Sloveniji itd.). Poznate radonske banje u Srbiji su Sokobanja, Banja Badanja i Niška Banja [Stojković, 2015].

Najbrojnija ispitivanja koncentracije radona u vodama u našoj zemlji vršena su u Niškoj Banji. Prema istraživanjima, Niška Banja se smatra oblašću sa visokom prirodnom radioaktivnošću. Izvršeno preliminarno istraživanje radona u zatvorenim prostorijama pokazuje da koncentracije aktivnosti ovog gasa iznose od 63.7 do 1300 kBq m<sup>-3</sup>. Visok sadržaj radona izmeren je i na izvoru "Školska česma" (slika 8.) i iznosi 648(38) Bq l<sup>-1</sup>. Došlo se do zaključka da očekivana godišnja efektivna doza može prekoračiti i 50 mSv za medicinsko osoblje koje radi pored bazena sa termalnom vodom [Nikolov et al, 2012].

Razlog postojanja povišene koncentracije radona u Niškoj Banji su geološke i hidrogeološke karakteristike područja na kom se nalazi. Oko termalne vode izvorišta "Školska česma" se formira travertin (bigar), kao posledica gubljenja  $CO_2$  iz rastvora  $C_2H_2CaO_6$  (kalcijum-bikarbonat). Debljina sloja iznosi 25 m, a sadržaj radijuma je 470(40) Bq kg<sup>-1</sup> [Nikolov et al, 2012]. U litološkom smislu, izvorište je locirano i u neogenskom basenu debljine ~ 500 n. Ispod ovih sedimenata se nalaze mezozojski krečnjaci, dolomiti, dolomitični krečnjaci i klastilni karvonatni sedimenti [Stojković, 2015]. Premski i karbonatni peščari, konglomerati, alveroliti i škrilji su raspostranjeni na širem području Niške Banje, kao i debonski škriljci, konglomerati, alveroliti, peščari i krečnjačke stene. Po hemijskom sastavu, termalne vode Niške Banje su malo mineralizovane, elektroprovodljivost je u opsegu 540 - 571 mS cm<sup>-1</sup> [Stojković, 2015].

U istraženom području postoje brojni rasedi i pukotine, najvažniji za cirkulaciju podzemnih voda. Dolazi do mešanja hladnih i termalnih voda. Zbog duboke cirkulacije omogućeno je grejanje vode, a na putu do površine se ohladi zahvaljujući prilivu hladnije vode iz krasa. Subtermalni ili termalni izvori mogu dobiti radon od radijuma adsorbovanog na plitkim depozitima gvožđe(II) hidroksida koji su nastali interakcijom dubokih anoksičnih voda sa mladom kraškom vodom bogatom kiseonikom. Najviša temperatura zabeležena je na izvoru "Glavno vrelo" i iznosi 39,6 °C. Najniža temperatura je na izvoru "Školska česma" i iznosi 21 °C [Nikolov et al, 2012].



Slika 8. Vrelo "Školska česma" u Niškoj Banji

# 5. RADIOIZOTOP <sup>226</sup>Ra

Radijum je prirodni radioaktivni element koji se nalazi u zemljištu i stenama Zemljine kore. Radijum, u obliku radijum hlorida otkrili su Marija i Pjer Kiri 1898. godine. Izdvojili su ovo jedinjenje radijuma iz uraninita i objavili otkriće u Francuskoj akademiji nauka pet dana posle. Marija Kiri i Andre-Lui Debiern su izolovali radijum u elementarnom obliku elektrolizom radijum hlorida 1911. godine.

# 5.1. Poreklo i karakteristike radijuma

Radijum (Ra) je element druge grupe periodnog sistema elemenata, grupe zemnoalkalnih metala. Čisti radijum je srebrnasto-bele boje, ali lako reaguje sa azotom pri izlaganju vazduhu, te se formira crni površinski sloj radijum nitrita (Ra<sub>2</sub>N<sub>2</sub>) (slika 9.). U prirodi, radijum se može naći u rudama uranijuma i (u manjim količinama) torijuma u tragovima – 1 gram po toni rude uranijuma.

Radijum nije neophodan element za žive organizme, a može imati štetan uticaj na zdravlje kada se koristi u biohemijskim procesima zbog svoje radioaktivnosti i hemijske reaktivnosti. Trenutno, osim njegove upotrebe u nuklearnoj medicini. radijum nema komercijalne aplikacije. Ranije, radijum je korišćen kao radioaktivni izvor radioluminescentnih uređaja, a takođe i u nadrilekarstvu zbog navodnih isceliteljskih moći. Danas su ovakve primene radijuma potisnute zbog nepovoljnog jonizujućeg dejstva.



Slika 9. Radijum

Svi izotopi radijuma su izrazito reaktivni i radioaktivni. Do sada ih je otkriveno 33. Izotopi ovog radionuklida nastaju u uranijumovom, torijumovom i aktinijumovom nizu. Četiri izotopa radijuma nastaju u prirodnim radioaktivnim nizovima: <sup>223</sup>Ra, <sup>224</sup>Ra, <sup>226</sup>Ra i <sup>228</sup>Ra.

Radijum <sup>223</sup>Ra nastaje u aktinijumovom (<sup>235</sup>U) nizu. Period poluraspada ovog radionuklida iznosi  $T_{1/2} = 11,4$  dana.

Radijum <sup>224</sup>Ra je deo torijumovog (<sup>232</sup>Th) niza. Ima period poluraspada  $T_{1/2} = 3,64$  dana.

Radijum <sup>228</sup>Ra, kao i <sup>224</sup>Ra, deo je torijumovog (<sup>232</sup>Th) niza. Period poluraspada ovog radionuklida iznosi  $T_{1/2} = 5,75$  godina.

Najstabilniji izotop radijuma je <sup>226</sup>Ra. Deo je uranijumovog (<sup>238</sup>U) niza i nastaje raspadom uranijuma <sup>238</sup>U. <sup>226</sup>Ra ima period poluraspada  $T_{1/2} = 1600(7)$  god. i raspada se na radioaktivni gas radon <sup>222</sup>Rn. Prilikom raspada radijuma dolazi do jonizacije koja može da pobudi fluorescentna jedinjenja i prouzrokuje radioluminescenciju.

# 5.2. Raspad i produkti radijuma <sup>226</sup>Ra

Radijum <sup>226</sup>Ra je alfa i gama emiter. Alfa raspadom, <sup>226</sup>Ra se raspada na izotop radona <sup>222</sup>Rn. Šema raspada <sup>226</sup>Ra data je na slici 10. Verovatnoća emisije alfa čestice iznosi 94,3 %. Verovatnoća za emisiju gama zraka je značajno niža [L'Annunziata, 2012].

Radijum <sup>226</sup>Ra se može odrediti direktno iz gama linije od 0,186 keV (prikazane na slici 10.), mada zbog niske verovatnoće emisije gama zraka, često se pristupa indirektnom određivanju.

Indirektno, <sup>226</sup>Ra se metodama gama spektrometrije određuje preko potomaka sa kojima je uspostavljena sekularna radioaktivna ravnoteža:

- <sup>214</sup>Bi (609,32 keV, 1120,28 keV i 1764,51 keV)
- <sup>214</sup>Pb (295,22 keV i 351,99 keV) [L'Annunziata, 2012].



Slika 10. Šema raspada radijuma Ra-226

Zbog emisije  $\alpha$  čestica, kao i  $\beta$  čestica koje emituju njegovi potomci i  $\gamma$  zraka koji prate skoro sve emisije čestica, prirodni radijum (koga u najvećoj količini čini <sup>226</sup>Ra) ima višu temperaturu od svog okruženja.

# 5.3. Radijum <sup>226</sup>Ra u vodi

U prirodnim uslovima, radijum dospeva u podzemne vode iz stena u kojima se nalazi ovaj element. Sve stene sadrže radijum u malim količinama. Radijum se lako rastvara u podzemnim vodama kada su nivoi pH vode niski. Uopšte, površinska voda ima niske sadržaje radijuma; međutim, duboki vodonosni slojevi odakle se dobija voda za piće ponekad sadrže radijum iznad regulatornih standarda.

Podzemna voda, dok teče kroz pukotine stenovitih slojeva, rastvara minerale. Ukoliko stene sadrže značajnu količinu radijuma, a voda se kreće dovoljno sporo, kupiće veće količine radijuma.

Većina vodonosnika ne sadrži značajne količine radijuma. Međutim, radijum je pronađen u nekim privatnim i javnim bunarima. U vodi za piće nema miris, boju, ni ukus. Neposredni zdravstveni rizici od vode za piće koji sadrže niske nivoe radioaktvnosti su mali, ali ukoliko se ovakva voda konzumira tokom života, zdravstveni rizici su povećani.

Sa povećanjem dubine izvorišta, koncentracija <sup>226</sup>Ra u vodi raste.

Radijum se u prirodi nalazi i kao posledica određenih ljudskih aktivnosti kao što su nanošenje vode, tokom oluja, prisutne zbog rudarskih iskopavanja, ispuštanja industrijskog i medicinskog otpada, detonacije nuklearnog oružja ili slučajno ispuštanje iz nuklearnih elektrana.

Radijum se u ljudsko telo unosi hranom i vodom u kojoj je ovaj radionuklid prisutan. Opasnost od <sup>226</sup>Ra se ogleda u njegovoj osobini da se nakuplja u kostima i mokraćnoj bešici, gde se raspada i izlaže organizam jonizujućem zračenju.

# 6. MERNE METODE ZA MERENJE <sup>222</sup>Rn U VODI

# 6.1. Tečna scintilaciona spektroskopija (LSC)

*Liquid Scintillation Counting* (LSC) uređaji se prevashodno koriste za određivanje  $\alpha$  i  $\beta$  aktivnosti uzoraka. Pored toga, moguće ih je upotrebiti i za detekciju  $\gamma$  emitera, radionuklida koji emituju X zrake, neutrone, kao i Augerove i konverzione elektrone. Efikasnost tečnog scintilacionog brojača za  $\alpha$  čestice iznosi gotovo 100%, dok je efikasnost detekcije ovih detektora za  $\beta$  čestice manja, i opada sa smanjenjem energije  $\beta$  čestica. Delovi brojača su: scintilator, fotomultiplikator i elektronski uređaj za pojačavanje i obradu impulsa.

Pojavu scintilacija u organskim jedinjenjima pod uticajem zračenja otkrio je H.P. Kalman, nemački fizičar 1937. godine.

Kao posledica deekscitacije organskih molekula, emituje se fluorescentna svetlost koja može biti konvertovana pomoću fotomultiplikatorske cevi u električne impulse. Uvedeni su koincidentni tečni scintilacioni brojači sa dve fotomultiplikatorske cevi. Fotomultiplikatorske cevu su postavljene naspramno i detektuju lavinu fotona, a koincidentna elektronika omogućava detekciju impulsa ukoliko obe cevi istovremeno registruju tok fotona (unutar opsega od 20 ns). Korišćenje dva PMT-a umanjuje uticaj šuma i pozadinskog zračenja za skoro red veličine u odnosu na detektore sa jednom fotomultiplikatorskom cevi. Još jedna prednost detektora sa dva PMT-a je povećana rezolucija spektara.

#### 6.1.1. Karakteristike scintilatora

Dobrim scintilatorom se smatra onaj koji ima mogućnost konvertovanja što većeg dela energije upadnog zračenja u promptnu fluorescenciju sa što manjim udelom odložene fluorescencije i fosforescencije.

Scintilaciona efikasnost predstavlja deo energije jonizujućeg zračenja koji se konvertovao u vidljivu svetlost (fluorescenciju). Zavisi od vrste i energije jonizujućeg zračenja. Nečistoće u scintilatorima doprinose relaksacijama neradijativnim putem, kao što su pretvaranje energije pobude u toplotu ili kroz vibracije rešetke. Relaksacije neradijativnim putem su konkurentni procesi scintilacijama.

Scintilaciona efikasnost ili konverzija S, definisana je kao odnos između energije koju čestica izgubi po jedinici puta na izračenu svetlost (fluorescenciju)  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{sv}$  i odgovarajuće izgubljene energije na jonizaciju  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{ion}$ :

$$S = \frac{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{sv}}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{jon}}.$$
(6.1)

Pod pretpostavkom da velika gustina jonizacije duž putanje čestice dovodi do prigušenja zbog pogođenih molekula, i samim tim redukuje scintilacionu efikasnost, Birks je došao do relacije:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{sv} = \frac{S\left(\frac{dE}{dx}\right)_{jon}}{1+kB\left(\frac{dE}{dx}\right)_{jon}},\tag{6.2}$$

gde je: *B* – gustina jonizovanih molekula;

*k* – frakcija jonizovanih molekula koji će dovesti do prigušenja;

kB – parametar koji može biti podešen kako bi odgovarao eksperimentalnim podacima za dati scintilator.

U slučaju da se ekscitacije u LSC koktelu odvijaju preko brzih elektrona,  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{jon}$  je malo za velike vrednosti energija *E*, Biksova formula predviđa da će rastući svetlosni prinos po jedinici izgubljene energije biti konstantan, tj. režim će biti linearan:

$$E_{sv} = SE . ag{6.3}$$

Za alfa čestice  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{jon}$  je veliko i duž putanje čestice dolazi do saturacije, te Biksova formula dobija oblik:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{SV} = \frac{S}{kB} \,. \tag{6.4}$$

Prolaskom naelektrisane čestice, kristal-scintilator se zapali. Posle  $10^{-12}$  s, emitovana svetlost dostiže maksimalnu vrednost. Nakon vremena t koje je duže od t<sub>0</sub> ( $10^{-12}$  s), emisija svetlosti opada po eksponencijalnom zakonu:

$$I(t) = J_0 e^{-t/\tau} \,, \tag{6.5}$$

gde je:  $\tau$  – srednji ili prosečni život pobuđenih stanja u atomu scintilatora (vreme gorenja);

J(t) – broj fotona emitovanih u trenutku *t*. U slučaju da je vreme *t* kraće, kraće je i vremensko razlaganje scintilacionog brojača.

### 6.1.2. Vrste scintilatora

Scintilatori se dele na neorganske, organske i gasovite.

#### Neorganski scintilatori

Neorganski scintilatori su monokristali određenih organskih jedinjenja i alkalnih metala (alkalnih jodida), u kojima su prisutne male koncentracije nečistoća. Danas su u upotrebi najzastupljeniji: NaI(Tl), CsI(Tl), CaI(Na), LiI(Eu) i CaF<sub>2</sub>(Eu). U zagradama su naznačeni elementi nečistoća prisutnih u scintilatorina, koji imaju ulogu aktivatora, tj. luminescentnih centara. Koncentracija aktivatora je mala (npr. udeo talijuma u NaI(Tl) iznosi 10<sup>-3</sup> po molu), ali dovoljna da omogući pojavu luminescencije u kristalu prelazima u ovim atomima. Luminescencija je posledica prelaza (deekscitacije elektrona) između diskretnih energetskih nivoa (koje formiraju aktivatori) u zabranjenoj zoni. Najveći deo energije jonizujućeg zračenja se preda kristalnoj rešetki, dok se samo mali deo prenosi atomima nečistoća (npr. kod NaI(Tl) 12 % upadne enerje prouzrokuje luminescenciju u talijumu). Monokristali scintilatora imaju veliku gustinu i visok svetlosni prinos koji garantuju visoku detekcionu efikasnost, pri čemu je odziv za elektrone i  $\gamma$  zrake linearan u visokom opsegu energija. Vreme gorenja neorganskih kristala (~ 1 µs) je dugo u poređenju sa vremenom gorenja organskih kristala (~ 10 ns).

#### Gasoviti scintilatori

Gasoviti scintilatori su smeše plemenitih gasova. Scintilacije kod gasovitih scintilatora su rezultat atomskih prelaza u plemenitim gasovima. S obzirom na to da je emitovana svetlost iz UV oblasti, dodaju im se gasovi (npr. azot) koji pomeraju spektar emitovanog zračenja. Vreme raspada im je jako kratko, efikasnost za  $\gamma$  detekciju veoma mala, te se koriste za detekciju teških čestica,  $\alpha$  čestica, fisionih fragmenata i teških jona.

#### Organski scintilatori

Organski scintilatori su aromatična organska jedinjenja. Odgovor organskih scintilatora na teže čestice je manji u odnosu na elektrone jednakih energija, i očigledno nije linearan za teže čestice.

1. Čisti organski scintilatori su monokristali organskih jedinjenja. Najčešće su u upotrebi antracen i trans-stilben. Povećanje luminescencije ne zahteva prisustvo molekula aktivatora (nečistoća). Najveću efikasnost konverzije od svih organskih scintilatora ima antracen od oko 4,2 %. Efikasnost konverzije trans-stilbena iznosi oko 2,8 %. Vreme gorenja organskih kristala je kratko, za antracen oko 30 ns, za trans-stilben od 4 do 8 ns. Pogodni su za detekciju naelektrisanih čestica i brzih neutrona preko uzmaknutog protona. Pored toga, čisti organski scintilatori su osetljivi i na  $\gamma$  zrake, ali im je energetska rezolucija lošija.

2. **Plastični organski scintilatori** su čvrsti rastvori organskih scintilatora u organskim tečnostima. Poseduju svojstva slična tečnim organskim scintilatorima, s prednošću da ih nije potrebno stavljati u viale i mogućnost da se prave u raznim oblicima i merama u zavisnosti od

potrebe eksperimenta. Koriste se za detekciju  $\alpha$ ,  $\beta$  čestica,  $\gamma$  zraka i brzih neutrona. Svetlosni prinos im je manji nego kod antracena i iznosi oko 3%, vreme gorenja je kratko (2 – 3 ns), a talasne dužine maksimalnog emitovanog intenziteta iznose od 350 do 450 nm.

3. **Tečni organski scintilatori** se dobijaju rastvaranjem primarnih organskih scintilatora u odgovarajućim rastvaračima (uz moguće dodavanje *wavelength shitfter*-a, tj. sekundarnih rastvorenih scintilatora koji pomeraju emitovani spektar radi boljeg poklapanja sa spektrom fotomultiplikatorske cevi). Veoma je bitan efikasan prenos energije od molekula rastvarača do rastvorenog scintilatora. Tečni organski scintilatori treba da se čuvaju u zatvorenim bocama jer će kiseonik, ukoliko je prisutan u ovim scintilatorima, delovati kao prigušivač (*quencher*) i može dovesti do značajne redukcije efikasnosti fluorescencije. Nemaju čvrstu rešetku, te su otporniji na intenzivnu radijaciju (čak do  $10^5$  Gy) od čvrstih i plastičnih scintilatora. Često se koriste u eksperimentima koji zahtevaju detektore velikih zapremina, dimenzija i do nekoliko metara. S obzirom na to da je obezbeđena  $4\pi$  geometrija, efikasnost detekcije emitovanih čestica od strane radionuklida rastvorenih u ovim scintilatorima može iznositi skoro 100 %. Dobri su za merenja aktivnosti niskoenergetskih  $\beta$  emitera kao što su <sup>14</sup>C i <sup>3</sup>H, za detekciju kosmičkih zraka i snimanje neutrona energija reda MeV.

Idealan scintilacioni materijal trebalo bi da poseduje naredne osobine:

1. Scintilator mora biti pogodan za interakciju sa nuklearnim zračenjem i mora posedovati mogućnost konverzije kinetičke energije naelektrisanih čestica u detektabilnu svetlost sa visokom efikasnošću konverzije i visokim prinosom fotona.

2. Konverzija treba da bude linearna – svetlosni prinos bi trebalo da bude proporcionalan predatoj energiji upadnog zračenja u što širem energetskom opsegu.

3. Medijum bi trebalo da bude transparentan za talasne dužine sopstvene emitovane svetlosti.

4. Vreme raspada indukovane luminescencije treba da bude kratko kako bi moglo doći do generisanja brzih impulsa.

5. Materijal odličnih optičkih karakteristika bi trebalo da u praksi bude i dovoljnih dimenzija kako bi poslužio kao detektor.

6. Indeks refrakcije materijala bi trebalo da bude približno onome kod stakla (~ 1.5) da bi efikasno prenošenje scintilacije u fotomultiplikatorima bilo omogućeno. Pored toga, radi poboljšanja transformacije svetlosti u električne impulse, scintilacioni spektar mora odgovarati maksimumu spektralne osetljivosti fotokatode fotomultiplikatorske cevi.

7. Scintilator mora imati dovoljnu rastvorljivost.

8. Scintilator treba da bude što manje osetljiv na prisustvo supstanci prigušivača.

Ni jedan materijal nema istovremeno sve navedene osobine. Scintilatori se biraju tako da u najvećoj meri zadovolje zahteve merenja. U upotrebi su najčešće neorganski kristali alkalnih halogenida (uglavnom NaI, jer ima najveću efikasnost svetlosne konverzije -28 %), imaju

najveći svetlosni prinos, dobru linearnost odziva, ali često im je odziv spor; i organski tečni ili plastični scintilatori – imaju brži, ali slabiji prinos svetlosti.

Zbog bolje energetske rezolucije, za spektroskopiju  $\alpha$  zračenja danas su češće u upotrebi poluprovodnički nego scintilacioni detektori. Organski i plastični scintilatori se uglavnom koriste za detekciju  $\beta$  čestica, ali se zbog loše energetske rezolucije upotrebljavaju kao brojači. Brzina brojanja scintilacionih detektora je mnogo veća nego kog gasnih zbog kratkog vremena trajanja svetlosnog impulsa (10<sup>-7</sup> do 10<sup>-9</sup> s) posle detekcije čestice. Zračenje u scintilacionim detektorima prolazi kroz veću gustinu materijala. Ova činjenica uzrokuje efikasnost scintilacionih detektora koja je nekoliko redova veličine veća od gasnih detektora. Scintilacioni detektori imaju široku primenu u detekciji i spektroskopiji  $\gamma$  zračenja. Najpogodniji scintilator je NaI(TI).

Vreme luminscencije tečnih i plastičnih scintilatora je kratko (omogućava detekciju veoma velikog broja brzih sukcesivnih događaja), te im je vremenska rezolucija veoma dobra. Veoma su pogodni za  $\beta$  spektroskopiju, dok se ređe koriste u  $\gamma$  spektroskopiji.

#### 6.1.3. Scintilacioni procesi u organskim scintilatorima

Radioaktivni uzorak, prethodno rastvoren u organskom rastvaraču ili u vodi, se stavlja u staklene ili plastične bočice u koje se dodaje scintilacioni koktel. Dobija se homogeni rastvor za merenje. Uglavnom, u scintilacionom koktelu se nalazi rastvarač u kome je rastvoreno organsko jedinjenje u koncentraciji od 2 do 10 g  $l^{-1}$ .

#### Interakcija jonizujućeg zračenja sa tečnim scintilatorima

Prolaskom kroz materjal, jonizujuće zračenje stvara jonske parove, pobuđene molekule, slobodne radikale, sekundarne čestice, i povećava energiju molekula (vibracionu, rotacionu i kinetičku). Naposletku, emisija fotona iz scintilacionog rastvora zavisi od konkurentnih reakcija kao što su neutralizacija, dekompozicija, reakcije slobodnih radikala, emisija X-zraka, fluorescencija, fosforescencija, neradijaciona deaktivacija itd.

Alfa čestice stvaraju visku koncentraciju jona u materijalu kroz koji se kreću, imaju neuniformnu i, u odnosu na elektrone, visoku specifičnu jonizaciju (sem na samom kraju putanje gde jonizacija naglo raste i za  $\alpha$  i za  $\beta$  čestice). Energija alfa čestice emitovane u  $\alpha$  raspadu je u opsegu od 2 do 8 MeV. U interakcijama sa organkskim molekulima u scintilacionom koktelu se emituje u proseku 1 foton po keV energije raspada.

Prolaskom kroz scintilacioni koktel,  $\alpha$  čestice stvaraju 1/10 dela intenziteta scintilacija po jedinici svoje energije u odnosu na  $\beta$  čestice. Iz navedenog razloga,  $\alpha$  čestice koje imaju monoenergetski spektar, stvoriće jedan pik čiji bi maksimum odgovarao 1/10 njene energije, te detekcijom 5 MeV  $\alpha$  čestice u koktelu, uočava se pik na 500 keV.

#### Energetski transfer u tečnim scintilatorima

S obzirom na to da većina aromatičnih rastvarača nisu dobri scintilatori, potrebno je obezbediti efikasan transfer energije od pobuđenih molekula rastvarača do molekula rastvorenog scintilatora.

Primarni transfer energije se dešava među molekulima rastvarača.

Pri sekundarnom transferu, energija se prenosi sa molekula rastvarača do molekula rastvorenog scintilatora. Sekundarni transfer je neradijativan proces. Brzina energetskog transfera k je izražena kao:

$$k = \frac{1}{\tau_0} \left(\frac{R}{R_0}\right)^6,\tag{6.6}$$

gde je: R – rastojanje donora i akceptora;

 $R_o$  – kritično rastojanje transfera, tj. rastojanje između donorskog i akceptorskog molekula na kom je verovatnoća transfera jednaka verovatnoći svih drugih mogućih procesa pri kojima bi donor otpustio energiju (radijativna emisija, prigušenje, neradijaciona deaktivacija itd.);

 $\tau_0$  – vreme radijativnog raspada molekula donora.

 $R_0$  se dobija iz izraza:

$$R_0^{\ 6} = \frac{9000 \ln 10K^2}{128 \,\pi^5 n^4 N_A} \int_0^\infty F_D(\bar{\nu}) \epsilon_A(\bar{\nu}) , \qquad (6.7)$$

gde je: K – faktor orijentacije;

n – indeks refrakcije rastvarača;

 $N_A$  – Avogadrov broj;

 $F_D(\bar{v})$  – spektralna distribucija fluorescentne emisije molekula donora;

 $\epsilon_A(\bar{v})$  – molarni ekstinkcioni koeficijent za molekul-akceptor.

#### Fluorescencija

Fluorescencija u organskim scintilatorima je rezultat prelaza između energetskih nivoa u molekulu.

Nakon što apsorbuju energiju, elektroni se ekscituju do viših energetskih stanja. Razlika između energetskih nivoa u vidu vibracionih stanja molekula iznosi oko 0,15 keV. Tokom apsorpcije energije, elektroni se ekcituju, nakon čega se dešava deekscitacija (u vremenskom intervalu od  $\sim 1$  ps) neradijacionom internom konverzijom (proces u kom ne dolazi do emisije fotona). Interna konverzija i emisija fotona predstavljaju konkurentne procese deekscitacija. S obzirom na to da se deo energije pobude troši na prelaze između vibracionih

nivoa pobuđenog elektronskog stanja, opseg talasnh dužina emitovane svetlosti je pomeren u odnosu na opseg talasnih dužina apsorbovane svetlosti. Emisioni i apsorpcioni spektar nekog organskog molekula se malo poklapaju, te je samoapsorpcija emitovane fluorescentne svetlosti mala (slika 11.). Talasne dužine emitovane svetlosti su manje u odnosu na talasne dužine apsorbovane svetlosti, te će emitovana svetlost izbeći apsorpciju od strane koktela i izneti informaciju o odigranoj interakciji.

#### Scintilacioni proces u koktelima

U bočicu (vial) smešteni su ispitivani radioaktivni materijal i scintilacioni koktel koji se sastoji od rastvarača (S) i scintilatora koji emituje fluorescentnu svetlost (F). Ekscitaciju molekula fluora prati deekscitacija, pri kojoj se emituje UV ili vidljiva (plava) svetlost (slika 12.) talasnih dužina u opsegu od 375 do 430 nm ( $F^* \rightarrow F + hv$ ). Scintilacioni koktel i zid viala su transparentni za svetlost ovih talasnih dužina. Nastali fotoni dolaze do fotomultiplikatorske cevi. Intenzitet emitovane svetlosti je proporcionalan energiji koju naelektrisana čestica preda detektoru. Izlazni signal iz fotomultiplikatora je proporcionalan intenzitetu svetlosti. Na slici 12. naznačene su i interferencije hemijskog i obojenog prigušenja ("chemical" i "color quenching") opisanog procesa.



Slika 11. Apsorpcioni i emisioni spektar organskih molekula

Intenzitet svetlosti koju emituje molekul scintilatora srazmeran je energiji radioaktivnog raspada. Broj impulsa po jedinici vremena je srazmeran broju raspada po jedinici vremena, tj. radioaktivnosti uzorka.



Slika 12. Šema osnosvnog procesa u tečnom scintilatoru

### 6.1.4. Komponente LSC koktela

#### Rastvarači

Rastvarači koji se koriste u LSC koktelu, jer imaju veliku gustinu  $\pi$ -elektrona su: benzen, toulen, ksilen i pseudokumen. Nepovoljne osobine klasičnih rastvarača kao što su zapaljivot, toksičnost, miris, prodiranje kroz plastiku, visok pritisak pare itd. imali su doprinos u razvoju novih, "bezbednijih" rastvarača: di-izopropilnaftalen (DIN), fenilksililetan (PXE), dodecilbenzen (LAB).

Udeo rastvarača u LSC koktelu iznosi od 60 do 99 % od ukupne zapremine koktela.

#### Scintilatori

LSC kokteli sadrže jedan ili dva scintilatora. Primarni scintilatori vrše inicijalnu izmenu energije, ali se talasna dužina emitovane svetlosti ne poklapa sa optimalnom talasnom dužinom detekcije u fotompultiplikatorskoj cevi. Kako bi se emitovana talasna dužina pomerila na onu koja odgovara cevi fotomultiplikatora, koriste se sekundarni scintilatori.

Udeo scintilatora u LSC koktelu iznosi od 0,3 do 1 % zapremine koktela. Koncentracije sekundarnih scintilatora su obično oko 1 % koncentracije primarnog scintilatora.

#### Površinski molekuli

Korišćenje aromatičnih organskih rastvarača obezbeđuje najefikasniji energetski transfer. Radionuklidi prisutni u vodenoj sredini se ne mešaju sa aromatičnim rastvaračima, te se koriste deterdženti koji formiraju mikroemulziju i na taj način dovode vodenu fazu u bliski kontakt sa organskom fazom. Bliski kontakt vodene i organske faze omogućuje efikasan energetski transfer i uspešno kvantitativno i kvalitativno merenje radionuklida u vodenim rastvaračima.

#### 6.1.5. Fotomultiplikatori

Određen broj fotona dospeva na fotokatodu fotomultiplikatorske cevi. Nakon udara, ovi fotoni izbacuju elektrone iz cevi PMT-a. Nakon elektronsko-optičkog fokusiranja, stvoreni mlaz elektrona dolazi do sistema dinoda koji ga, putem rastućeg električnog polja, pojačava i do nekoliko redova veličina. Izlazni impuls se šalje na ulaz elektronskog pojačavača koji vrši pojačavanje, a zatim brojanje ili analizu obrađenog impulsa. Na slici 13. prikazana je šema fotomultiplikatorske cevi.



Slika 13. Šema fotomultiplikatorske cevi

### 6.1.6. Procesi koji ometaju LSC detekciju

U procese koji ometaju LSC detekciju spadaju:

#### Pozadinsko zračenje

Pozadinsko zračenje ("*background*") predstavlja odbroje koji potiču od spoljašnjih izvora (kosmičko zračenje, zračenje iz okoline), kao i od samog detektora i fotomultiplikatora. Pri svakom merenju aktivnosti uzorka, potrebno je oduzeti odbroj *background*-a. Odbroj *background*-a se dobija dovoljno dugim merenjem *blank*-a, odnosno bočice u kojoj se nalazi scintilacioni koktel sa svim ostalim činiocima koji se koriste u priremi uzorka, sem radionuklida koji se ispituje. Noviji detektori imaju mogućnost memorisanja, pozivanja i oduzimanja spektra pozadinskog zračenja od odbroja uzoraka prilikom merenja.

Umanjivanje, ili potpuno odstranjenje uticaja pozadinskog zračenja moguće je učiniti pomoću koincidentnih kola, pasivne zaštite, kao i aktivne zaštite.

#### Prigušenje

Jedan od razloga smanjenja efikasnosti detekcije je taj što minerali rastvoreni u prirodnim vodama mogu apsorbovati emitovane fotone iz scintilatora.

Prigušenje smanjuje intenzitet fotona i efikasnost detekcije LSC-a, odnosno predstavlja gubitak energije u toku njenog prenosa. Postoje tri vrste prigušenja: jonizaciono, hemijsko i obojeno.

Jonizaciono prigušenje predstavlja smanjenje broja gusto pobuđenih molekula scintilacionog koktela usled njihove interakcije.

Usled prenosa od rastvarača do rastvorenog scintilatora, molekuli scintilatora mogu delimično apsorbovati energiju pre konverzije u fotone, jer elektronegativni atomi vezuju  $\pi$ 

elektrone iz aromatičnih rastvora i time smanjuju broj dostupnih  $\pi$  elektrona za efikasan prenos energije. Opisana pojava naziva se hemijsko prigušenje.

Prigušenje boje predstavlja atenuaciju fotona pri apsorpciji ili rasejanju fotona pre njihove detekcije. Posledica ovog, kao i ostalih prigušenja je smanjen izlazni svetlosni signal u fotomultiplikatorima.

Metode za korekciju prigušenja u LSC merenjima su: metod internog standarda, metode na osnovu karakteristika spektra uzorka, metod eksternog standarda i direktni metod [Stojković, 2015].

#### Mešanje radionuklida

Ukoliko se uzorak sastoji od smeše više radionuklida, javlja se problem preklapanja spektara i interferencije. Svi radionuklidi koji emituju  $\beta$  čestice stvaraju kontinualni spektar energija ovih čestica [Stojković, 2015].

#### Luminescencija

Luminescencija u LSC koktelima predstavlja emisiju fotona koja je posledica deekscitacije pobuđenih molekula nakon apsorpcije energije koja ne potiče od nuklearnog zračenja.

Bioluminescencija predstavlja emisiju fotona nastalih prilikom određenih biohemijskih reakcija.

Fotoluminescencija nastaje tokom izlaganja smeše uzorka i scintilacionog koktela UV zračenju. Obično je jednofotonski proces koji se raspada za nekoliko minuta, te se može otkloniti ostavljanjem uzorka na tamnom mestu 10 do 15 minuta.

Hemiluminescencija predstavlja nastanak fotona u scintilacionom koktelu prilikom hemijskih reakcija. Posledica je deekscitacija pobuđenih molekula hemijskim reakcijama i pH efektima nakon mešanja koktela sa rastvorom uzorka. Otklanja se ostavljanjem uzorka na nekoliko časova (maksimalno 24 časa) nakon pripreme uzoraka kako bi se odigrale sve hemijske reakcije i postigla hemijska stabilnost uzorka.

#### Statički efekat

Statički efekat je posledica fotona stvorenih od strane elektrostatičkog pražnjenja. Trenjem ili pritiskom između dva materijala nastaje statički elektricitet. Nakon razdvajanja neprovodnih materijala, jedan deo zadržava pozitivno, a drugi negativno naelektrisanje. Pražnjenje statičkog elektriciteta je slučajan događaj koji se može desiti tokom pripreme uzoraka u vialima [Stojković, 2015].

#### Efekat zidova

Ukoliko se koriste plastični viali, organski scintilatori mogu probiti zid bočice. Plastični viali u čije zidove je prodro rastvarač mogu vršiti scintilacije, što bi izazvalo distorziju visina impulsa u spektru eksternog standarda. Posledice ovoga bi bile pogrešno određene efikasnosti

detekcije i pogrešno izračunate aktivnosti uzorka. Navedeni problem je prevaziđen upotrebom ekološki bezbednih koktela u kombinaciji sa plastičnim ili staklenim vialima, ili upotrebom klasičnih koktela u staklenim vialima.

### 6.1.7. Quantulus 1220<sup>тм</sup>

Quantulus 1220<sup>TM</sup> (*Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer Wallac 1220*<sup>TM</sup> *Quantulus*, proizvođač Perkin Elmer, Finska), prikazan na slici 14., je tečni scintilacioni spektrometar sa mogućnošću merenja izrazito niskih nivoa radioaktivnosti (veštačkih, kosmičkih i drugih prirodnih radionuklida). Koristi se za detekciju  $\alpha$ ,  $\beta$  zračenja, Čerenkovljevog zračenja, X-zraka, Augerovih elektrona, luminescencije i  $\gamma$  zračenja.

Osnovne prednosti Quantulus-a u odnosu na druge tipove detektora su:

- visoka stabilnost, i u slučaju dugog vremena merenja,
- napredno razdvajanje  $\alpha$  i  $\beta$  spekara,
- pasivna atenuacija zračenja iz okoline (olovna zaštita sa dovoljno niskom radioaktivnošću) i aktivna zaštita od kosmičkog zračenja iz sredine, zahvaljujući kojoj su gubici u efikasnosti detekcije minimalizovani.

Pomoću Quantulus-a moguće je precizno meriti niske nivoe radioaktivnosti u okolini, kao i vršiti datiranje izotopom <sup>14</sup>C. LSC metod je efektivan pri analizi voda jer se uzorak direktno kombinuje sa tečnim scintilacionim koktelom, priprema uzorka je manje zahtevna i efikasnost brojanja je veća.

Fotomultiplikatori kojima je opremljen Quantulus pokazuju niske inherentne pozadinske efekte i spektralnu stabilnost, takođe, karakterišu se visokom kvantnom efikasnošću.

Maksimalna zapremina uzorka koji se smešta u Quantulus iznosi 20 ml, mada određenim tehnikama mogu biti postignute veća zapremina i veća osetljivost. Rukovanje uzorcima je fleksibilno i ostvaruje se pomoću tri, programski kontrolisana, 4×5 matrična niza za uzorke. Nakon merenja uzoraka u ciklusima po mekoliko puta, izračunava se prosečna vrednost rezultata. Zadavanje vremena merenja za svaki uzorak posebno je, takođe, moguće.



Slika 14. Quantulus 1220TM

#### 6.1.7.1. Detektorska zaštita

Komora sa vialima okružena je sistemom redukcije pozadinskog zračenja, koji se sastoji od pasivne i aktivne zaštite.

#### Pasivna zaštita

Pasivna zaštita se sastoji od masivne olovne zaštite (niske radioaktivnosti) koja služi za atenuaciju većeg dela  $\gamma$  zračenja iz okoline i meke mionske komponente kosmičkog zračenja, i od sloja bakra koji ima ulogu apsorbera X-zračenja i termalnih neutrona nastalih u olovu interakcijom kosmičkih zraka.

### Aktivna zaštita

Aktivna zaštita od detekcije koincidentnih događaja zasniva se na scintilatoru na bazi mineralnog ulja. Otkljanja prirodne fluktuacije potekle od pozadinskih efekata, tj. služi za otklanjanje signala koji potiču od  $\gamma$  zraka iz okoline, kao i sve mione energija reda GeV koji dođu do detektora.

Aktivna zaštita sačinjena je od asimetričnog štita sa tečnim scintilatorom (cilindar u čijoj cevi se nalazi  $\beta$  detektor koji okružuje komoru sa merenim uzorkom). Oko scintilatora postavljen je par fotomultiplikatora koji rade u antikoncidenciji sa parom fotomultiplikatora koji su postavljeni oko komore sa vialom.

### 6.1.7.2. Višekanalni analizatori (MCA – MultiChannel Analyzer)

Tehnologija višestrukih višekalanih analizatora uvedena je kako bi bili ispunjeni zahtevi merenja koje ne mogu ispuniti brojači bazirani na diskriminaciji visine impulsa ili tehnilogije sa jednim "statičkim" višekalanim analizatorom. U pomenute zahteve spadaju: praćenje stabilnosti uzorka i promene efikasnosti detekcije tokom dugog perioda brojanja neophodnog za merenje niskih aktivnosti. Neophodna je i detekcija i korekcija hemiluminescencije i statičkog elektriciteta. Pored toga, efikasnost aktivne zaštite vrši uticaj na rezultate, te je potrebno pratiti i promene ovog parametra. Takođe, pored parametara koji su vezani za statistiku brojanja, posmatraju se i parametri koji opisuju okruženje instrumenta kao što su varijacije fluksa, kontaminacija radonom itd.

Quantulus sadrži dva dualno programabilna višekanalna analizatora, gde jedan ima ulogu aktivne zaštite, a drugi beleži spektre. Podeljeni su na dve polovine i omogućuju istovremeno merenje četiri spektra, pri čemu svaki ima razoluciju od 1024 kanala.

#### 6.1.7.3. Analiza impulsa u Quantulus-u

Quantulus je opremljen sa dva kola za analizu impulsa: analizator oblika impulsa (PSA – *Pulse Shape Analysis*) koji služi za razdvajanje  $\alpha$  i  $\beta$  spektara, kao i dodatno smanjenje pozadinskih efekata, i komparator amplituda impulsa (PAC – *Pulse Amplitude Comparator*), koji se koristi kako bi se izbeglo mešanje elektromagnetnih signala između fotomultiplikatora, što umanjuje uticaj pozadinskog zračenja.

#### Analiza oblika impulsa (PSA)

PSA, zbog mogućnosti identifikacije čestica jonizujućeg zračenja, obezbeđuje istovremeno snimanje čistih  $\alpha$  i  $\beta$  spektara i detekciju veoma niskih  $\alpha$  aktivnosti u prisustvu visoke  $\beta$  aktivnosti. Pored toga, smanjuje  $\beta$  pozadisnko zračenje, pogotovo u staklenim vialima, jer dodatno smanjuje pozadinsko zračenje već redukovano aktivnim antikoincidentnim zaštitnim detektorom.

S obzirom na to da  $\alpha$  čestice emituju energiju od 5 MeV ili više, moguć je nastanak tripletnih stanja u rastvaraču, čija deekscitacija do osnovnog nivoa traje duže od deekscitacije singletnih stanja nastalih  $\beta$  česticama. Odložena komponenta (rep signala) je funkcija broja singletnih i tripletnih ekscitovanih stanja  $\pi$ -elektrona oslobođenih prolaskom jonizujućeg zračenja kroz scintilacioni koktel, te alfa čestice stvaraju više tripletnih stanja od beta čestica. Merenje vremena trajanja ili dužine impulsa omogućuje identifikaciju čestice koja je izazvala taj impuls, što dalje omogućuje istovremeno snimanje čistih alfa i beta spektara. Pozadinski alfa efekti su značajno smanjeni primenom PSA kola u odnosu na ukupne pozadinske efekte u uzorku, koji su sačinjeni uglavnom od kratkih impulsa beta tipa.

Analizator oblika impulsa funkcioniše tako što integrali rep impulsa za dovoljno dug vremenski period, te postaje moguće razlikovati kratke i duge impulse, a nakon toga se vrši normiranje informacije o dužini impulsa na visinu impulsa, čime se postiže nezavisnost amplitude.

Tokom ovog procesa, spektar amplituda (energija)  $\alpha$  i  $\beta$  impulsa se transformiše u trodimenzioni odbroj u zavisnosti od amplitude impulsa i spektra impulsa. Elektronsko razdvajanje impulsa na  $\alpha$  i  $\beta$  spektar se postiže deljenjem ravni amplitude/dužine impulsa u dva dela pomoću prave koju korisnik može podesiti: impulsi iznad nje se usmeravaju na spektar dugih impulsa (čist  $\alpha$  spektar), a impulsi ispod nje se usmeravaju na spektar sa kratkim impulsima (čist  $\beta$  spektar). Podešavanjem PSA nivoa, kontroliše se položaj linije podele, i zavisiće od vrste rastvarača, scintilatora i nivoa prigušenja.

Pozadinsko zračenje kod LSC detektora se većim delom sastoji od kratkih impulsa, što znači da pripada  $\beta$  spektru, a pozadinski  $\alpha$  impulsi su uglavnom mnogo manji od 0.1 CPM. Zbog navedenog razloga, raspadi iz nizova prirodnih radionuklida se mogu meriti sa većom osetljivošću ako se mere samo njihove  $\alpha$  emisije, a ne njihova ukupna  $\alpha/\beta$  aktivnost. PSA ima primenu i u merenju izrazito niskih  $\alpha$  aktivnosti u prisustvu značajno većih  $\beta$  aktivnosti.

PSA nivo može biti podešen tako da "odseče" efikasnost brojača  $\beta$  impulsa za npr. 5 %, što bi redukovalo  $\beta$  pozadinsko zračenje pogotovo u slučaju upotrebe staklenih bočica, pri čemu bi se i dodatno smanjilo već nisko pozadinsko zračenje postignuto radom antikoincidentnog zaštitnog detektora. Analogno,  $\alpha$  pozadisnko zračenje se umanjuje "odsecanjem" efikasnosti brojača  $\alpha$  impulsa.

#### Poređenje amplituda impulsa (PAC)

PAC služi za smanjivanje komponente pozadinskog zračenja koja je izazvana optičkim "*crosstalk*"-om, tj. mešanjem elektromagnetnih signala u toku LSC merenja.

#### 6.1.7.4. Korekcija prigušenja u Quantulus-u

Prigušenje može biti nadomešteno upotrebom kalibracione krive zavisnosti efikasnosti detekcije od stepena prigušenja, odnosno nivoa eksternog standarda SQP(E). SQP(E) predstavlja odnos centra mase izmerenog spektra i neprigušenog teorijskog spektra, odnosno najviši kanal koji obuhvata 99,5 % svih odbroja koji čine spektar eksternog izvora. Korekciona kriva prigušenja se dobija merenjem skupa standarda, serije uzoraka koji sadrže isti radionuklid u scintilacionom koktelu sa istim koncentracijama aktivnosti, ali sa različitim nivoom prigušenja što smanjuje njihove odbroje.

Dve faze merenja SQP(E)-a su:

- 1. Dovođenje eksternog standarda <sup>152</sup>Eu do uzorka i snimanje spektra koji je suma odbroja iz uzorka i Komptonovih uzmaknutih elektrona i  $\gamma$  interakcija <sup>152</sup>Eu
- Uklanjanje eksternog standarda, snimanje događaja koji potiču iz uzorka tokom istog vremena kao i u fazi 1. Spektar spoljašnjeg standarda <sup>152</sup>Eu i SQP(E) se računaju na osnovu razlike snimljenih spektara.

Kada se snima uzorak nepoznatog nivoa prigušenja, upotrebljava se vrednost SQP(E) koju Quantulus automatski izbacuje za svaki uzorak i na osnovu kalibracione krive prigušenja dobija se efikasnost detekcije u snimanom uzorku.

# 7. OPIS EKSPERIMENTA

Na jugoistoku Republike Srbije, u blizini grada Niša nalazi se Niška Banja. Vode Niške Banje bogate su radonom <sup>222</sup>Rn. Cilj ovog rada bilo je ispitivanje uticaja izotopa radijuma <sup>226</sup>Ra na merenje koncentracije aktivnosti radona <sup>222</sup>Rn u vodi. Za potrebe rada iskorišćena je radonom bogata voda sa Školske česme u Niškoj Banji (slika 10.).

# 7.1. Priprema uzoraka

LSC metodom su merene koncentracije aktivnosti radijuma i radona u vialima sa četiri različite vrste scintilacionih koktela: UGAB (*Ultima Gold AB*), OFO (*Opti-Fluor O*), MOS (*High Efficiency Mineral Oil Scintillator*) i UGF (*Ultima-Gold F*).

Ispitivanja su izvršena na vodi sa Školske česme u Niškoj Banji. Voda sa Školske česme uzorkovana je 20. marta 2018. godine. Po dopremanju u laboratoriju, uzorci vode su pripremljeni za merenje sadržaja <sup>222</sup>Rn u njima, tako što je u staklenim vialima po 10 ml od svih pomenutih scintilacionih koktela pomešano sa 10 ml uzorka izvorske vode.

S obzirom na to da je u uzorkovanoj vodi radon prirodno prisutan, kako bi se ispitao uticaj radijuma <sup>226</sup>Ra na merenje radona <sup>222</sup>Rn, vodi je dodat (spajkovan) radijum – vodeni standard <sup>226</sup>Ra poznate koncentracije aktivnosti (Czech Metrology Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation, pripremljen u rastvoru 1 g BaCl2 l-1 + 10 g HCl l-1, specifične aktivnosti 39,67 (20) Bq ml-1, sa kombinovanom nesigurnosti 0,5%).

Priprema ovih uzoraka vršena je tako što je u 10 ml scintilacionog koktela dodat standard radijuma <sup>226</sup>Ra. Za sve četiri vrste scintilacionih koktela punile su se po tri bočice pomenutim radijumom <sup>226</sup>Ra u količinama 20 µl, 100 µl i 200 µl, odnosno 80 Bq l<sup>-1</sup>, 396,7 Bq l<sup>-1</sup> i 793,4 Bq l<sup>-1</sup> radijuma <sup>226</sup>Ra, respektivno. Dodavanje radijuma izvršeno je 23. marta 2018. godine u 13:50 časova. Nakon toga, u bočice je dodato po 10 ml vode sa Školske česme. Posle dodavanja vode, merne bočice su se intenzivno mućkale nekoliko minuta. Tokom mućkanja, radon <sup>222</sup>Rn se skoro u potpunosti izdvojio iz vode i prešao u scintilacioni koktel, dok su drugi radionuklidi, elementi ili minerali ostali u vodi.

# 7.2. Metoda merenja

Ispitivanje uticaja radijuma <sup>226</sup>Ra na merenje radona <sup>222</sup>Rn u vodi vršeno je tečnim scintilacionim brojačem Quantulus 1220<sup>TM</sup>.

Za potrebe LSC ispitivanja, korišćena su četiri različita organska scintilatora. Prema opisu proizvođača (Perkin Elmer):

- Ultima Gold AB (UGAB) je tečni scintilacioni koktel specijalno dizajniran za preciznu alfa/beta diskriminaciju u LSC-u. Ovaj koktel se vrlo dobro meša sa vodom. Uzorci pripremljeni sa ovim koktelom su monofazni, ali su mutni (slika 15.).
- High Efficiency Mineral Oil Scintillator (MOS) je koktel koji služi za detekciju radona u vodi i uzorcima zemljišta.
- Opti-Fluor O (OFO) je idealan za merenje radona u vodi kada je poželjan bezbedniji koktel.
- Ultima-Gold F (UGF) je koktel visoke efikasnosti za analizu suvih filtera, kao i organskih uzoraka.

Uzorci pripremljeni sa MOS, OFO i UGF koktelima su dvofazni, s obzirom na to da se ovi kokteli ne mešaju sa vodom.



Slika 15. Pripremljeni uzorci sa monofaznim UGAB i dvofaznim OFO, MOS i UGF scintilacionim koktelima

Svi uzorci mereni su LSC detektorom Quantulus 1220<sup>TM</sup> (Perkin Elmer, Finland) [Quantulus 1220, 2002]. Spektri su prikupljeni pomoću WinQ i analizirani programom Easy View (Perkin Elmer).

### 7.2.1. Kalibracija tečnog scintilacionog detektora

Jedna od metoda za određivanje koncentracije aktivnosti radona u vodi za piće, površinskoj i podzemnoj vodi je US-EPA metoda "EPA Method 913.0" [US EPA, 1991].

Važan zadatak je kalibracija mernog sistema. Najčešće primenjivan način kalibracije se vrši pomoću pretka, referentnog standarda radijuma <sup>226</sup>Ra, koji poseduje period poluraspada  $T_{1/2} = 1600(7)$  god. Pri ovoj metodi kalibracije koriste se prednosti sekularne radioaktivne ravnoteže koja se postiže između jezgara radijuma <sup>226</sup>Ra i radona <sup>222</sup>Rn za oko 27 dana (7 perioda poluraspada radona <sup>222</sup>Rn).

U cilju određivanja efikasnosti detekcije LSC sistema prema pomenutoj EPA metodi, priprema se i meri set kalibracionih standarda sa poznatom aktivnošću <sup>226</sup>Ra.

Kalibracioni uzorci se pripremaju tako što se 10 ml koktela pomeša sa 10 ml rastvora koji sadrzi destilovanu vodu i vodeni rastvor standarda <sup>226</sup>Ra poznate koncentracije aktivnosti. Nakon pripreme, potrebno je da kalibracioni uzorci stoje oko 30 dana u cilju postizanja radioaktivne ravnoteže <sup>226</sup>Ra i <sup>222</sup>Rn. S obzirom na to da na difuziju radona utiču temperatura i pritisak, potrebno je da pripremljeni uzorci pre merenja stoje nekoliko sati u laboratoriji radi postizanja ravnoteže u uzorku u laboratorijskim uslovima (na sobnoj temperaturi od 20 °C). Posle nekoliko sati stajanja u mraku, dostignuta je ravnoteža radona i kratkoživećih potomaka, a hemiluminescentne i fotoluminescentne reakcije su eliminisane i uzorak je spreman za merenje u LSC-u. Preporučljivo je vršiti merenja u trajanju od najmanje 50 minuta, obično u više ciklusa.

Takođe, veoma bitna je i priprema *blank* uzoraka: tri *blank* uzorka se pripremaju mešanjem 10 ml destilovane vode i 10 ml scintilacionog koktela u staklenim mernim bočicama. Potrebno je vršiti periodična merenja *blank*-ova i kalibracionih uzoraka zajedno sa realnim uzorcima radi provere stabilnosti sistema u okviru sistema kontrole kvaliteta merenja.

Prema EPA metodi, potrebno je izračunati parametre:

- Kalibracioni faktor (CF),
- Koncentraciju aktivnosti <sup>222</sup>Rn u uzorcima voda, kao i njenu  $2\sigma$  mernu nesigurnost i
- Minimalnu detektabilnu aktivnost (MDA).

**Kalibracioni faktor, CF** [min<sup>-1</sup> Bq<sup>-1</sup>], predstavlja efikasnost detekcije <sup>226</sup>Ra, odnosno <sup>222</sup>Rn i računa se na osnovu merenja kalibracionih standarda <sup>226</sup>Ra poznate aktivnosti kao:

$$CF = \frac{S-B}{C \cdot V},\tag{7.1}$$

gde je: *S* [min<sup>-1</sup>] – odbroj radijumovog standarda;

 $B [\min^{-1}] - \text{obroj } blank-a;$ 

C [Bq 1<sup>-1</sup>] – koncentracija aktivnosti kalibracionog <sup>226</sup>Ra standarda u ravnoteži sa <sup>222</sup>Rn;

V [l] – zapremina merenog standarda.

Koncentracija aktivnosti <sup>222</sup>Rn u uzorcima voda i njena  $2\sigma$  merna nesigurnost:

$$A(^{222}Rn)[Bq l^{-1}] = \frac{G-B}{CF \cdot D \cdot V},$$
 (7.2)

$$2\sigma[\text{Bq }l^{-1}] = \frac{2\left(\frac{G}{T_G} + \frac{B}{T_B}\right)^{1/2}}{CF \cdot D \cdot V},$$
(7.3)

gde je:  $G[\min^{-1}]$  – ukupan odbroj uzorka;

$$D = \exp(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}}t)$$
 - faktor korekcije na raspad <sup>222</sup>Rn računat za vreme *t*;

t – vreme proteklo od uzorkovanja do sredine perioda merenja uzorka u detektoru;

 $T_{1/2}$  (<sup>222</sup>Rn) = 3,8235(3) dana;

V [1] – zapremina uzorka;

*T<sub>B</sub>* [min] – vreme merenja *blank*-a;

 $T_G$  [min] – vreme merenja uzorka.

Minimalna detektabilna aktivnost (MDA) [Bq l<sup>-1</sup>] se izračunava kao:

$$MDA = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{B \cdot T_B}}{CF \cdot D \cdot V \cdot T_B}.$$
(7.4)

Primer *MDA* zavisnosti od vremena merenja *blank*-a dobijen za različite scintilacione koktele, tri dvofazna (MOS, UGF i OFO) i jedan monofazni (UGAB), prikazan je na grafiku 2.



Grafik 2. MDA krive za različite scintilacione koktele [Nikolov et al, 2018]

Na slici 20. prikazani su spektri dobijeni prilikom upotrebe različitih scintilationih koktela (u ovom slučaju UGAB, MOS, UGF i OFO). Jasno se uočava da oblik i položaj spektra zavisi od hemijskog sastava koktela.



Slika 16. Spektri kalibracionih uzoraka <sup>226</sup>Ra u ravnoteži sa <sup>222</sup>Rn (prikaz iz software-a EasyView) pripremljenih sa različitim scintilacionim koktelima [Nikolov et al, 2018]

Tabela 2. prikazuje vrednosti CF faktora, SQP(E) parametra i širinu prozora u kome se čitaju površine pikova koji potiču od <sup>226</sup>Ra potomaka, kao i *MDA* vrednosti za upotrebljene scintilacione koktele.

Scintilacioni koktel	CF [min <sup>-1</sup> Bq <sup>-1</sup> ] PSA=70	SQP(E)	Optimalni prozor alfa spektra [kanali]	MDA [Bq 1 <sup>-1</sup> ] PSA=70 za vreme merenja od 300 min
UGAB	218 (6)	776,0	600-790	0,038
UGF	150,6 (25)	957,5	830-970	0,104
MOS	140,8 (20)	874,4	725-875	0,065
OFO	151 (4)	894,0	760-910	0,104

Tabela 2. Vrednosti relevantnih parametara EPA metode za različite scintilacione koktele [Nikolov et al, 2018]

### 7.2.2. Uslovi merenja

Prva merenja uzoraka vode sa Školske česme u Niškoj Banji pomoću tečnog scintilacionog detektora vršena su 21. marta 2018. godine, odmah po prijemu uzoraka u laboratoriju. Na osnovu ovog merenja određena je početna koncentracija radona u momentu uzorkovanja: dobijeni rezultat je korigovan na raspad radona uzimajući u obzir vreme proteklo od uzorkovanja do srednjeg trenutka svih merenja određenog uzorka.

Naredni datum merenja je bio 23. mart 2018. godine. Ovaj datum je približan jednom periodu poluraspada radona <sup>222</sup>Rn ( $T_{1/2} = 3,82$  dana), proteklom od dana uzorkovanja 20. marta 2018. godine.

Datum trećeg merenja je 29. mart 2018. godine, što je priblizno 3 vremena poluraspada radona <sup>222</sup>Rn.

Četvrto merenje uzoraka bez radijuma <sup>226</sup>Ra, izvršeno je 19. aprila 2018. godine. Protekli period iznosi približno 7 vremena poluraspada radona <sup>222</sup>Rn, nakon kog vremena bi trebalo da se uspostavila radioaktivna ravnoteža između <sup>226</sup>Ra i <sup>222</sup>Rn, tako da se dobijeni rezultat odnosi na koncentraciju aktivnosti <sup>226</sup>Ra u uzorku.

Prva tri merenja uzoraka vode sa Školske česme u Niškoj Banji u koje je dodat standard radijuma <sup>226</sup>Ra vršena su na približne datume merenja vode bez dodatka radijuma.

Prvo merenje je izvršeno 24. marta 2018. godine.

Drugo merenje vode sa dodatim radijumom izvršeno je 30. marta 2018. godine, kada bi trebalo da je prošlo približno tri perioda poluraspada radona <sup>222</sup>Rn.

Treće merenje izvršeno je 20. aprila 2018. godine. Do ovog trenutka prošlo je priblizno 7 perioda poluraspada radona <sup>222</sup>Rn i postigla se radioaktivna ravnoteža sa pretkom, radijumom <sup>226</sup>Ra.

Četvrto merenje izvršeno je 22. maja 2018. godine, približno mesec dana nakon trećeg merenja. Treće i četvrto merenje uzoraka u kojima je spajkovan <sup>226</sup>Ra standard treba posmatrati kao kontrolu validnosti svih prethodno dobijenih rezultata za svaki upotrebljeni koktel: naime, s obzirom da je u uzorcima postignuta <sup>222</sup>Rn/<sup>226</sup>Ra ravnoteža, očekuje se da izmerena koncentracija aktivnosti bude jednaka spajkovanoj koncentraciji aktivnosti <sup>226</sup>Ra standarda.

Sva merenja vršena su u laboratoriji za nuklearnu fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu, u jednakim uslovima.

Za potrebe izračunavanja koncentracije aktivnosti radona <sup>222</sup>Rn u vodi, bilo je potrebno odrediti vrednost CF faktora. Vrednosti CF faktora za svaki od 4 scintilaciona koktela su prikazane u tabeli 2. i izabrane su pod uslovima da PSA faktor ima vrednost 70.

# 7.3. Rezultati merenja i diskusija

Na graficima 3-6, prikazani su rezultati merenja koncentracije aktivnosti radona <sup>222</sup>Rn u uzorcima vode sa Školske česme u Niškoj Banji dobijeni LSC metodom za jedan monofazni UGAB scintilacioni koktel i tri dvofazna scintilaciona koktela, OFO, MOS i UGF u funkciji vremena proteklog od datuma uzorkovanja.

Funkcija data na graficima predstavlja teorijsku pretpostavku koncentracije aktivnosti radona koja je dobijena prema izrazu:

$$A = A_0 e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}}t} , (7.5)$$

gde je: A – koncentracija aktivnosti u datom trenutku t;

 $A_0$  – početna vrednost koncentracije aktivnosti, za koju su se, u ovom slučaju, uzele vrednosti eksperimentalno dobijene za svaki od koktela na dan prvog merenja, 21. marta 2018. godine i korigovane na trenutak uzorkovanja,

 $T_{1/2}$  – vreme poluraspada radona <sup>222</sup>Rn.

Takođe, rezultati merenja prikazani su i u tabelama 3., 4., 5. i 6. Dato je vreme *t* proteklo od dana uzorkovanja. Radi poređenja, prikazana je teorijska pretpostavka vrednosti koncentracije aktivnosti na dane merenja dobijena izrazom (7.5),  $A_{teo}$ . Sa *A* [Bq l<sup>-1</sup>] obeležene su vrednosti koncentracije aktivnosti radona u merenim uzorcima.



Grafik 3. Rezultati merenja sadržaja <sup>222</sup>Rn u uzorcima sa UGAB koktelom:  $A(t)=389(11) e^{-\frac{\ln 2}{3,824}t}$ 



*Grafik 4. Rezultati merenja sadržaja*<sup>222</sup>*Rn u uzorcima sa OFO koktelom:*  $A(t)=515(14) e^{-\frac{ln2}{3.824}t}$ 



Grafik 5. Rezultati merenja sadržaja <sup>222</sup>Rn u uzorcima sa MOS koktelom:  $A(t)=531(8) e^{-\frac{ln2}{3,824}t}$ 



Grafik 6. Rezultati merenja sadržaja <sup>222</sup>Rn u uzorcima sa UGF koktelom:  $A(t)=458(8) e^{-\frac{ln2}{3,824}t}$ 

Na graficima 3-6 vidi se da su teorijske vrednosti koncentracija aktivnosti radona (dobijene prema funkciji raspada) pribižne izmerenim vrednostima. Najbolja poklapanja dobijena su u uzorcima pripremljenim sa UGAB koktelom. Dakle, dolazi se do zaključka da je EPA metoda merenja radona u vodi tečnim scintilacionim detektorom adekvatna, mada se u zavisnosti od korišćenog scintilacionog koktela mogu javiti razlike u dobijenim rezultatima, što je u vezi sa efikasnošću vezivanja radona od strane svakog pojedinačnog koktela [Nikolov et al, 2018]. Dobijene teorijske funkcije iskorišćene su da se proceni prvobitna koncentracija<sup>222</sup>Rn, što je prikazano u tabelama 3-10. U pomenutim tabelama, prikazane su i korigovane vrednosti radona na dan uzorkovanja. Na osnovu rezultata prikazanih u tabelama 3-10 može se zaključiti da se nakon 30 dana dobijaju precenjene vrednosti za preko 15% u odnosu na očekivanu početnu vrednost koncentracije aktivnosti <sup>222</sup>Rn, kao i da nakon 7-8 perioda poluraspada<sup>222</sup>Rn dobijeni merni rezultati nisu dovoljno precizni.

UGAB						
	t [dan]	1,67		t [dan]	3,31	
21.2	Ateo [Bq/l]	389(8)	22.2	Ateo [Bq/l]	213(6)	
21.3.	A [Bq/l]	389(11)	23.3.	A [Bq/l]	212(6)	
	Korekcija	389(11)		Korekcija	387(11)	
	t [dan]	9,06		t [dan]	30.33	
20.3	Ateo [Bq/1]	75,1(21)	10.4	Ateo [Bq/1]	1,58(4)	
29.3.	A [Bq/l]	74,4(22)	19.4.	A [Bq/l]	1,83(15)	
	Korekcija	385(11)		Korekcija	450(36)	
Backg	round [cpm]	0,065				
CF [cpm/Bq] 218(6		218(6)				
600-790 ch						

Tabela 3. Rezultati merenja sadržaja 222Rn u uzorcima sa UGAB koktelom (prikazani na Grafiku 3)

Tabela 4. Rezultati merenja sadržaja <sup>222</sup>Rn u uzorcima sa OFO koktelom (prikazani na Grafiku 4)

	OFO						
	t [dan]	1,77		t [dan]	3,42		
24.2	Ateo [Bq/l]	515(10)	22.2	Ateo [Bq/1]	277(7)		
21.3.	A [Bq/l]	515(14)	23.3.	A [Bq/l]	300(8)		
	Korekcija	515(14)		Korekcija	559(15)		
	t [dan]	9,17		t [dan]	30.44		
20.2	Ateo [Bq/l]	97.5(27)	10.4	Ateo [Bq/1]	2,05(6)		
29.3.	A [Bq/l]	107(3)	19.4.	A [Bq/l]	2,42(21)		
	Korekcija	556(16)		Korekcija	605(53)		
Background [cpm] 0,39		0,396					
CF [cp	CF [cpm/Bq]						
760-910 ch							

MOS						
	t [dan]	1,87		t [dan]	3,54	
21.2	Ateo [Bq/1]	531(6)	22.2	Ateo [Bq/l]	279(4)	
21.3.	A [Bq/l]	531(8)	23.3.	A [Bq/l]	313(5)	
	Korekcija	531(8)		Korekcija	595(9)	
	t [dan]	9,27		t [dan]	30,54	
20.2	Ateo [Bq/1]	98.7(15)	10.4	Ateo [Bq/l]	2,08(3)	
29.3.	A [Bq/l]	108,6(20)	19.4.	A [Bq/l]	2,49(20)	
	Korekcija	584(11)		Korekcija	634(52)	
Background [cpm] 0,		0,075				
CF [cpm/Bq] 140,		140,8(20)				
725-875 ch						

Tabela 5. Rezultati merenja sadržaja <sup>222</sup>Rn u uzorcima sa MOS koktelom (prikazani na Grafiku 5)

Tabela 6. Rezultati merenja sadržaja 222 Rn u uzorcima sa UGF koktelom (prikazani na Grafiku 6)

		UC	F		
	t [dan]	2		t [dan]	3,65
21.2	Ateo [Bq/1]	458(6)	22.2	Ateo [Bq/1]	236(4)
21.3.	A [Bq/l]	458(8)	25.5.	A [Bq/l]	260(5)
	Korekcija	458(8)		Korekcija	505(9)
	t [dan]	9.37		t [dan]	30,65
20.2	Ateo [Bq/1]	83,6(15)	10.4	Ateo [Bq/1]	1,76(3)
29.3.	A [Bq/l]	94.1(19)	19.4.	A [Bq/l]	2.23(19)
	Korekcija	515(11)		Korekcija	581(48)
Backg	Background [cpm] 0,099				
CF [cpm/Bq] 150,6(25)					
830-970 ch					

U tabelama 7-10, prikazani su rezultati merenja uzoraka u koje je dodat standard radijuma <sup>226</sup>Ra. Prikazani su rezultati za uzorke sa monofaznim scintilacionim koktelom UGAB i za uzorke sa OFO, MOS i UGF dvofaznim scintilacionim koktelima. U svaki od 4 različita koktela dodavano je 20, 100 i 200 µl radijuma, odnosno 80 Bq l<sup>-1</sup>, 396,7 Bq l<sup>-1</sup> i 793,4 Bq l<sup>-1</sup> radijuma <sup>226</sup>Ra, respektivno.

Prva dva merenja izvršena su u vremenskom opsegu dok radioaktivna ravnoteža između radijuma  $^{226}$ Ra i radona  $^{222}$ Rn još nije bila postignuta. Treće i četvrto merenje obavljeno je nakon postizanja radioaktivne ravnoteže. Dato je vreme *t* koje je proteklo od dana uzorkovanja.

Takođe, radi poređenja, prikazana je teorijska pretpostavka vrednosti koncentracije aktivnosti radona <sup>222</sup>Rn na dane merenja u bočicama bez standarda radijuma. Ove teorijske vrednosti izračunate su na osnovu teorijskih vrednosti koncentracije radona (raspada radona tokom vremena) prikazanih na graficima 3., 4., 5. i 6.

Sa A [Bq/l] obeležene su vrednosti koncentracije aktivnosti radona u merenim uzorcima.

Spektri uzoraka pripremani sa 4 ispitivana koktela (slike 17-32) tokom vremena su menjali oblik što može biti posledica uticaja određenih hemijskih supstanci prisutnih u vodi, te su izlazili iz prethodno utvrđenih mernih prozora (ROI). Merni prozori su potom prošireni kako bi svi Rn odbroji bili uzeti u obzir, a novi opsezi su priloženi u datim tabelama.

UGAB	Datum merenja	430-790 ch	ŠČ + 80 Bq/l	ŠČ + 396,7 Bq/l	ŠČ + 793,4 Bq/l
		t [dan]	4,620	4,690	4,750
ži		$A_{teo}$ ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	168(5)	166(5)	164(5)
note	24	A [Bq/l]	216(5)	441(11)	723(18)
rav		korekcija na 20.3. 14h	500(13)	1032(26)	1713(42)
n ns		t [dan]	10,850	10,940	11,000
Ni	30.3	$A_{teo}$ ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	54,3(15)	53,4(15)	52,8(15)
		A [Bq/l]	130(3)	442(11)	838(21)
		t [dan]	31,080	31,150	31,230
oteži	20.4	A <sub>teo</sub> ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	1,38(4)	1,36(4)	1,34(4)
avnc		A [Bq/l]	88.2(23)	432(11)	863(21)
ı u ra		t [dan]	63,850	63,940	64,000
Jesu	22.5	A <sub>teo</sub> ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	361(10)E-05	355(10)E-05	352(10)E-05
		A [Bq/l]	87,6(23)	425(11)	842(21)
Background [cpm]		98			
CF [cpm/E	3q] 246	(6)			

Tabela 7. Rezultati merenja sadržaja 222Rn u uzorcima sa spajkovanim Ra-226, pripremani sa UGAB koktelom



Slika 17. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGAB koktelom, snimljeni 24.3.2018.



Slika 18. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGAB koktelom, snimljeni 30.3.2018.



Slika 19. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGAB koktelom, snimljeni 20.4.2018.



Slika 20. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGAB koktelom, snimljeni 22.5.2018.

OFO	Datum merenja	650-910 ch	ŠČ + 80 Bq/l	ŠČ + 396,7 Bq/l	ŠČ + 793,4 Bq/l
		t [dan]	5,150	5,170	5,210
ċži		$A_{teo}$ ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	202(6)	201(5)	200(5)
note	24	A [Bq/l]	260(7)	366(9)	394(10)
I rav		korekcija na 20.3. 14h	663(17)	935(24)	1013(26)
n ns		t [dan]	11,400	11,440	11,480
Ż	30.3	$A_{teo}$ ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	65,0(18)	64,6(18)	64,1(17)
		A [Bq/l]	140(4)	171(5)	206(5)
		t [dan]	31,620	31,650	31,690
oteži	20.4	$A_{teo}$ ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	1,66(5)	1,65(4)	1,64(4)
avnc		A [Bq/l]	85,6(24)	68,0(19)	127(3)
ı u ra		t [dan]	64,400	64,460	64,480
Jesu	22.5	$A_{teo}$ ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	433(12)E-05	428(12)E-05	427(12)E-05
		A [Bq/l]	66,3(19)	67,9(19)	130(4)
Backg	ground [cpm]	0,676			
CF [c	pm/Bq]	160(4)			

Tabela 8. Rezultati merenja sadržaja 222 Rn u uzorcima sa spajkovanim Ra-226, pripremani sa OFO koktelom



Slika 21. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa OFO koktelom, snimljeni 24.3.2018.



Slika 22. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa OFO koktelom, snimljeni 30.3.2018.



Slika 23. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa OFO koktelom, snimljeni 20.4.2018.



Slika 24. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa OFO koktelom, snimljeni 22.5.2018.

Tabela 9. Re	zultati merenja	sadržaja <sup>222</sup> Rn i	i uzorcima sa sp	ajkovanim R	Ra-226, p	ripremani sa	MOS koktelom
--------------	-----------------	------------------------------	------------------	-------------	-----------	--------------	--------------

MOS	Datum merenja	625-875 ch	ŠČ + 80 Bq/l	ŠČ + 396,7 Bq/l	ŠČ + 793,4 Bq/l
		t [dan]	4,830	4,920	4,980
ži	Ċ.	Ateo (222Rn) [Bq/1]	221(3)	217(3)	215(3)
note	24	A [Bq/l]	286(4)	414(6)	441(6)
rav		korekcija na 20.3. 14h	688(9)	1011(13)	1089(14)
n ns		t [dan]	11,080	11,150	11,230
ïŻ	30.3	Ateo (222Rn) [Bq/1]	71,1(11)	70,2(11)	69,2(11)
		A [Bq/l]	154.2(23)	204(3)	243(3)
	20.4.	t [dan]	31,330	31,370	31,460
oteži		Ateo (222Rn) [Bq/1]	1,80(3)	1,80(3)	1,76(3)
avnc		A [Bq/l]	93,0(15)	85,5(15)	161,7(24)
n ra		t [dan]	64,080	64,150	64,480
Jesu	22.5	Ateo (222Rn) [Bq/1]	473(7)E-05	467(7)E-05	440(7)E-05
		A [Bq/l]	88,8(15)	74,9(14)	153,0(23)
Background [cpm]		0,29			
CF [cp	m/Bq]	167(2)			



Slika 25. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa MOS koktelom, snimljeni 24.3.2018.



Slika 26. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa MOS koktelom, snimljeni 30.3.2018.



Slika 27. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa MOS koktelom, snimljeni 20.4.2018.



Slika 28. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa MOS koktelom, snimljeni 22.5.2018.

UGF	Datum merenja	a 730-970 ch	ŠČ + 80 Bq/l	ŠČ + 396,7 Bq/l	ŠČ + 793,4 Bq/l
Nisu u ravnoteži	24.3.	t [dan]	5,020	5,060	5,100
		$A_{teo}$ ( <sup>222</sup> Rn) [Bq/l]	184(3)	183(3)	181(3)
		A [Bq/l]	277(5)	387(7)	415(7)
		korekcija na 20.3. 14h	689(12)	970(16)	1047(18)
	30.3.	t [dan]	11,270	11,310	11,350
		$A_{teo} (^{222}Rn) [Bq/l]$	59,2(11)	58,8(11)	58,4(11)
		A [Bq/l]	154,3(28)	203(4)	210(4)
Jesu u ravnoteži	20.4.	t [dan]	31,500	31,540	31,580
		$A_{teo} (^{222}Rn) [Bq/l]$	1,51(3)	1,50(3)	1,49(3)
		A [Bq/l]	89,9(18)	99,4(19)	113,6(22)
	22.5.	t [dan]	64,270	64,310	64,350
		$A_{teo} (^{222} Rn) [Bq/l]$	394(7)E-05	391(7)E-05	389(7)E-05
		A [Bq/l]	87,1(17)	91,7(18)	100,4(19)
Background [cpm]		0,246			
CF [cpm/Ba]		159.2(25)			

Tabela 10. Rezultati merenja sadržaja 222 Rn u uzorcima sa spajkovanim Ra-226, pripremani sa UGF koktelom



Slika 29. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGF koktelom, snimljeni 24.3.2018.



Slika 30. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGF koktelom, snimljeni 30.3.2018.



Slika 31. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGF koktelom, snimljeni 20.4.2018.



Slika 32. Spektri uzoraka sa spajkovanim Ra-226, pripremljeni sa UGF koktelom, snimljeni 22.5.2018.

Validacija metode prvenstveno se može izvesti analizom rezultata koji su dobijeni po uspostavljanju sekularne radioaktivne ravnoteže <sup>226</sup>Ra/<sup>222</sup>Rn, kada se prirodni <sup>222</sup>Rn koji je bio prisutan u vodi potpuno raspao, te bi trebalo da u svim uzorcima budu izmerene tačno one koncentracije aktivnosti radijuma koje su i spajkovane. Jedino uzorci pripremljeni sa monofaznim scintilacionim koktelom UGAB su dali očekivane rezultate. Ovaj zaključak opravdava činjenica da se u UGAB scintilacionom koktelu formiraju homogeni uzorci pa se prilikom merenja ravnomerno detektuju alfa čestice i od <sup>222</sup>Rn i od <sup>226</sup>Ra [Salonen, 2010]. Dakle, EPA metoda [US EPA, 1991] se može koristiti za merenje<sup>226</sup>Ra u vodi LSC metodom kada se uspostavi sekularna radioaktivna ravnoteža <sup>226</sup>Ra/<sup>222</sup>Rn samo uz upotrebu monofaznog scintilacionog koktela, u ovom slučaju je to pokazano upotrebom koktela UGAB. S druge strane, kada se koriste dvofazni scintilacioni kokteli (OFO, UGF, MOS), ne dobija se očekivana, spajkovana koncentracija aktivnosti, što je posledica činjenice da <sup>226</sup>Ra ostaje u vodenoj fazi i ne prelazi u organsku fazu, dok njegov potomak <sup>222</sup>Rn ima veći afinitet ka organskoj fazi i prelazi iz vodene faze u zapreminu koktela [Salonen, 2010]. Pri upotrebi dvofaznih koktela, u slučaju kada se u uzorak dodaju niže koncentracije aktivnosti <sup>226</sup>Ra, dobijeni rezultati izmereni posle ostvarene ravnoteže su realniji nego što je to slučaj kod viših koncentracija aktivnosti 226Ra. Razlog za to bi mogao biti "kapacitet" koktela u smislu vezivanja radona u organskoj fazi.

U slučaju merenja koja su obavljena pre nastupanja sekularne radioaktivne ravnoteže <sup>226</sup>Ra/<sup>222</sup>Rn, dobijeni su "šarenoliki" rezultati, i jedino što se može zaključiti je da <sup>226</sup>Ra u značajnoj meri utiče na dobijene rezultate u zavisnosti od stepena ostvarene ravnoteže. Kada

se koriste scintilacioni kokteli koji se mešaju sa vodom – monofazni kokteli, poput UGAB, merenja pokazuju da <sup>226</sup>Ra u potpunosti interferira kod merenja <sup>222</sup>Rn i može dovesti do pogrešno procenjenih vrednosti (precenjenih vrednosti). Ovaj uticaj se ne može jednostrano definisati jer u zavisnosti od stepena ostvarene ravnoteže u uzorku rezultati merenja variraju. Pri upotrebi dvofaznih koktela (OFO, UGF, MOS), oni u organsku fazu vežu dominantno <sup>222</sup>Rn, dok <sup>226</sup>Ra ostaje u vodenoj fazi i samim tim se može reći da prisustvo <sup>226</sup>Ra u uzorku koji prirodno sadrži <sup>222</sup>Rn značajno utiče na dobijene merne rezultate jer <sup>226</sup>Ra konstantno proizvodi novi <sup>222</sup>Rn. Dvofazni kokteli se, sa druge strane ne mogu koristiti za mernje <sup>226</sup>Ra u vodi, jer i po uspostavljanju sekularne radioaktivne ravnoteže ne daju očekivane rezultate.

# 8. ZAKLJUČAK

Tema ovog rada bila je da se ispitaju mogućnosti i ograničenja metode merenja <sup>222</sup>Rn u vodi tečnim scintilacionim detektorom kada je u vodi koja prirodno sadrži povišenu koncentraciju aktivnosti radona (kao što je to slučaj kod prirodne izvorske vode sa Školske česme u Niškoj Banji) prisutan i <sup>226</sup>Ra u određenoj koncentraciji. Da bi se to postiglo u uzorcima prirodne vode sa pomenutog izvora u kojima je prethodno izmerena koncentracija aktivnosti <sup>222</sup>Rn, dodata je određena zapremina vodenog standarda <sup>226</sup>Ra. Uzorci izvorske vode koji su spajkovani <sup>226</sup>Ra standardom, mereni su odmah nakon pripreme, zatim u periodu tokom postizanja sekularne radioaktivne ravnoteže između <sup>226</sup>Ra i <sup>222</sup>Rn (za šta je potrebno oko 30 dana), kao i nakon dostignute ravnoteže. Uzorci su pripremani sa 4 različita scintilaciona koktela, pa su na taj način ispitane i mogućnosti merenja <sup>222</sup>Rn i/ili <sup>226</sup>Ra u vodi LSC metodom.

Na osnovu rezultata koji su dobijeni po uspostavljanju sekularne radioaktivne ravnoteže <sup>226</sup>Ra/<sup>222</sup>Rn posle 30 dana od momenta pripreme, kada se prirodni <sup>222</sup>Rn koji je bio prisutan u vodi potpuno raspao (7 perioda poluraspada), može se zaključiti da su jedino uzorci pripremljeni sa monofaznim scintilacionim koktelom UGAB dali očekivane rezultate (spajkovane koncentracije aktivnosti radijuma). Ovo je bilo i očekivano jer je UGAB scintilacioni koktel formirao homogene uzorke pa se prilikom merenja uzoraka sa ovim koktelom ravnomerno detektuju alfa čestice i od <sup>222</sup>Rn i od <sup>226</sup>Ra. Dakle, EPA metoda [US EPA, 1991] se može koristiti za merenje <sup>226</sup>Ra u vodi LSC metodom kada se uspostavi sekularna radioaktivna ravnoteža <sup>226</sup>Ra/<sup>222</sup>Rn samo uz upotrebu monofaznog scintilacionog koktela, u ovom slučaju UGAB. Kada se koriste dvofazni scintilacioni kokteli (OFO, UGF, MOS), zaključeno je da se ne dobija očekivana, spajkovana vrednost, pa se može zaključiti da deo <sup>226</sup>Ra ostaje u vodenoj fazi a ne veže se u organskoj fazi [Salonen, 2010].

U slučaju merenja koja su obavljena pre nastupanja sekularne radioaktivne ravnoteže <sup>226</sup>Ra/<sup>222</sup>Rn, jedino što se može zaključiti da <sup>226</sup>Ra u značajnoj meri utiče na dobijene rezultate i njegov uticaj se, naravno, menja u zavisnosti od stepena ostvarene ravnoteže.

Kada se koriste scintilacioni kokteli koji se mešaju sa vodom – monofazni kokteli, poput UGAB, dobija se homogena smeša uzorak – koktel. U ovakvim uzorcima, merenja pokazuju da <sup>226</sup>Ra u potpunosti interferira kod merenja <sup>222</sup>Rn i može dovesti do pogrešno procenjenih vrednosti (precenjenih vrednosti). Ovaj uticaj se ne može jednostrano definisati jer u zavisnosti od stepena ostvarene ravnoteže u uzorku rezultati merenja variraju. Kada koristimo dvofazne koktele (OFO, UGF, MOS), oni u organsku fazu vežu dominantno <sup>222</sup>Rn, dok <sup>226</sup>Ra ostaje u vodenoj fazi i samim tim se može reći da prisustvo <sup>226</sup>Ra u uzorku koji prirodno sadrži <sup>222</sup>Rn značajno utiče na dobijene merne rezultate jer <sup>226</sup>Ra konstantno proizvodi novi <sup>222</sup>Rn. Dvofazni kokteli se, sa druge strane ne mogu koristiti za mernje <sup>226</sup>Ra u vodi, jer i po uspostavljanju sekularne radioaktivne ravnoteže ne daju očekivane rezultate.

Daljim istraživanjima trebalo bi detaljnije ispitati uticaj <sup>226</sup>Ra na merenje <sup>222</sup>Rn posebno pri upotrebi dvofaznih koktela, jer je u ovom istraživanju primećeno i da se, kada se u uzorak

dodaju niže koncentracije aktivnosti <sup>226</sup>Ra, a posle ostvarene ravnoteže dobijaju realniji rezultati nego što je to slučaj kod viših koncentracija aktivnosti <sup>226</sup>Ra. Razlog za to bi mogao biti "kapacitet" koktela u smislu vezivanja radona u organskoj fazi.

# 9. LITERATURA

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

Canadian Nuclear Safety Commission (CNSC), *Radon and Health*, INFO-0813, Ottawa, Ontario, Canada, 2011.

*EPA Method 913.0 Determination of Radon in Drinking Water by Liquid Scintillation Counting.* Radioanalysis Branch, Nuclear Radiation Assessment Division, Environmental Monitoring Systems Laboratory. U.S. Environmental Protection Agency Las Vegas Nevada 89119, 1991.

S. Forkapić, *Istraživanje gasovitih radioaktivnih produkata uranijuma i torijuma*, Doktorska disertacija, PMF Novi Sad, 2013.

M. Galán López, A. Martín Sánchez, V. Gómez Escobar, *Application of ultra-low level liquid scintillation to the determination of*<sup>222</sup>*Rn in groundwater*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 261, No. 3 (2004) 631-636, Spain, 2004.

J. Hansman, *Istraživanje kvaliteta gamaspektrometrijskih merenja*, Master rad, PMF Novi Sad, 2011.

J. Nikolov, N. Todorović, T. Petrović Pantić, S. Forkapić, D. Mrđa, I. Bikit, M. Krmar, M. Vesković, *Exposure to radon in the radon spa Niška Banja, Serbia*, Radiation Measurements 47 (2012) 443-450, 2012.

J. Nikolov, I. Stojković, N. Todorović, B. Tenjović, S. Vuković, J. Knežević, *Evaluation of different LSC methods for* <sup>222</sup>*Rn determination in water*, Applied Radiation and Isotopes 142:56-63, 2018.

A. Papadopoulos, G. Christofides, A. Koroneos, S. Stoulos, C. Papastefanou, *Radioactive* secular equilibrium in <sup>238</sup>U and <sup>232</sup>Th series in granitoids from Greece, Applied Radiation and Isotopes75 (2013) 95–104, 2013.

L. Salonen, Comparison of two direct LS methods for measuring 222Rn in drinking water using  $\alpha/\beta$  liquid scintillation spectrometry, Applied Radiation and Isotopes 68: 1970–1979, 2010.

I. Stojković, *Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama*, Doktorska disertacija, PMF Novi Sad, 2015.

N. Todorović, I. Jakonić, J. Nikolov, J. Hansman, M. Vesković, *Estabilishment of a method* for <sup>222</sup>En determination in water by low-level liquid scintillation counter, Radiation Protection Dosimetry (2014), pp. 1–5, Novi Sad, Serbia, 2014.

N. Todorović, J. Nikolov, T. Petrović Pantić, J. Kovačević, I. Stojković, M. Krmar, *Radon in Water – Hydrogeology and Health Implication (Eds: Audrey M. Stacks)*, Nova Science Publishers, New York, ISBN: 978–1–63463–742–8, 2015.

https://www.britannica.com/science/radon#ref237174

http://enhs.umn.edu/hazards/hazardssite/radon/radonintro.html

https://depositphotos.com

http://www.epa.ie

http://www.omfi.hu

https://infograph.venngage.com/p/85503/radium

http://www.natefinney.com

# **10. BIOGRAFIJA**



Igor Marić je rođen 24. oktobra 1993. godine u Novom Sadu. Osnovnu školu "Dušan Radović" i Medicinsku školu "7. april" završio je u Novom Sadu. Po završetku srednje škole, osnovne akademske studije na Prirodnomatematičkom fakultetu na Univerzitetu u Novom Sadu (Departman za fiziku, obrazovni profil Medicinski fizičar) upisao je 2012. godine, koje je završio 2017. godine. Iste godine upisao je master akademske studije, modul Nuklearna fizika.

### UNIVERZITET U NOVOM SADU PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

# KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Redni broj:

RBR

Identifikacioni broj:

<b>IBR</b> Tip dokumentacije:	Monografska dokumentacija
<b>TD</b> <i>Tip zapisa:</i>	Tekstualni štampani materijal
<b>TZ</b> Vrsta rada:	Master rad
VR Autor:	Igor Marić, br. dos. 16m/17
AU Mentori:	dr Jovana Nikolov, docent PMF-a u Novom Sadu
MN	dr Ivana Stojković, docent FTN-a u Novom Sadu
Naslov rada:	Uticaj <sup>226</sup> Ra na merenje <sup>222</sup> Rn u vodi
NR Jezik publikacije:	srpski (latinica)
<b>JP</b> Jezik izvoda:	srpski/engleski
<b>JI</b> Zemlja publikovanja:	Srbija
<b>ZP</b> Uže geografsko područje:	Vojvodina
UGP Godina:	2018
GO Izdavač:	Autorski reprint
<b>IZ</b> Mesto i adresa:	Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad
<b>MA</b> Fizički opis rada:	(10/68/10/32/6/20)
FO	

Naučna oblast: Fizika NO Naučna disciplina: Nuklearna fizika ND Predmetna odrednica/ ključne reči: Radon, radijum, Tečna scintilaciona spektroskopija PO Čuva se: Biblioteka departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu ČU Važna napomena: Nema VN Izvod: Tema ovog rada bila je da se ispitaju mogućnosti i ograničenja metode merenja 222Rn u vodi tečnim scintilacionim detektorom (Quantulus 1220) IZ kada je u vodi koja prirodno sadrži povišenu koncentraciju aktivnosti radona (kao što je to slučaj kod prirodne izvorske vode sa Školske česme u Niškoj Banji) prisutan i <sup>226</sup>Ra u određenoj koncentraciji. Da bi se to postiglo u uzorcima prirodne vode sa pomenutog izvora u kojima je prethodno izmerena koncentracija aktivnosti 222Rn, dodata je određena zapremina vodenog standarda<sup>226</sup>Ra. Uzorci su mereni odmah po pripremi, i u određenom vremenskom periodu od momenta pripreme do momenta postizanja sekularne radioaktivne ravnoteže između 226Ra i 222Rn (što je period od oko 30 dana). Uzorci su pripremani sa 4 različita scintilaciona koktela, jednim monofaznim, i tri dvofazna, pa su na taj način ispitane i mogućnosti merenja 222Rn i/ili 226Ra u vodi LSC metodom. Datum prihvatanja teme od NN veća: DP Datum odbrane: 29.10.2018. DO Članovi komisije: KO Predsednik: Prof. dr Nataša Todorović, PMF, Novi Sad član: Doc. dr Lazar Gavanski, PMF, Novi Sad Doc. dr Jovana Nikolov, PMF, Novi Sad, mentori: Doc. dr Ivana Stojković, FTN, Novi Sad

# UNIVERSITY OF NOVI SAD

## FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS

# KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number:

ANO Identification number:	
<b>INO</b> Document type:	Monograph publication
<b>DT</b> <i>Type of record:</i>	Textual printed material
<b>TR</b> <i>Content code:</i>	Final paper
CC Author:	Igor Marić, 16m/17
AU Mentor/comentor:	Jovana Nikolov, PhD, Assistant professor, Faculty of Sciences, Novi Sad, Ivana Stojković, PhD, Assistant professor, Faculty of Technical Sciences,
MN Title:	Novi Sad <sup>226</sup> Ra influence on <sup>222</sup> Rn determination in water
<b>TI</b> Language of text:	Serbian (Latin)
<b>LT</b> Language of abstract:	English
LA Country of publication:	Serbia
<b>CP</b> <i>Locality of publication:</i>	Vojvodina
<b>LP</b> <i>Publication year:</i>	2018
<b>PY</b> Publisher:	Author's reprint
<b>PU</b> <i>Publication place:</i>	Faculty of Science and Mathematics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad
РР	

Physical description: PD	(10/68/10/32/6/20)
Scientific field:	Physics
<b>SF</b> Scientific discipline:	Nuclear Physics
<b>SD</b> Subject/ Key words:	Radon, radium, Liquid scintillation spectrometry
<b>SKW</b> Holding data:	Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4
HD Note:	None
N Abstract: AB	The topic of this research was to inspect the possibilities and limitations of Liquid Scintillation Counting (LSC) method for <sup>222</sup> Rn determination in water using Quantulus 1220 detector in case of analysis of water samples that naturally have higher concentration of radon (such as natural spring water from the "Školska česma" in Niška Banja) in the presence of non-negligible amount of <sup>226</sup> Ra. To achieve this, known acitivity concentration of aqueous <sup>226</sup> Ra standard was spiked into the samples of natural water in which <sup>222</sup> Rn content had been previously measured. The samples were counted two times before the secular radioactive equilibrium between <sup>226</sup> Ra and <sup>222</sup> Rn had been achieved (which happens 30 days after preparation) and two times in the equilibrium stage. All the samples were prepared with 4 different scintillation cocktails (one monophase and three two-phase) which provided thorough evaluation of LSC method for <sup>222</sup> Rn and/or <sup>226</sup> Ra determination in water samples.

Accepted by the Scientific Board:

ASB Defended on:	29 <sup>th</sup> October, 2018
<b>DE</b> Thesis defend board:	
<b>DB</b> President:	Nataša Todorović, PhD, Full professor, Faculty of Sciences, Novi Sad
Member:	Lazar Gavanski, PhD, Assistant professor, Faculty of Sciences, Novi Sad
Mentor/comentor:	Jovana Nikolov, PhD, Assistant professor, Faculty of Sciences, Novi Sad, Ivana Stojković, PhD, Assistant professor, Faculty of Technical Sciences, Novi Sad