

УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ ДЕПАРТМАН ЗА ФИЗИКУ



МЕТОДЕ МЕРЕЊА ²²²Rn У ВОДИ

– мастер рад –

ментор: доц. др Јована Николов кандидат: Јована Кнежевић

Нови Сад, 2017.

ПРЕДГОВОР

Свој рад бих започела речима Ричарда Фајнмана:

"I think nature's imagination is so much greater than man's, she's never going to let us relax"

Бавити се физиком значи имати непресушан извор идеја и инспирација; то није професија, то је и позив, који физичара приморава да истражује, размишља и непрестано преиспитује... Све што је наша свакодневница, од сијалице до модерних технологија продукт је великих умова, који се нису либили да уђу у коштац са природом и пронађу логику у свему. У мору генијалних умова, са почетком 20. века, издвајају се имена Радерфорда, Бекерела, Марије и Пјера Кирија, Ирене Жолио–Кири, Дирака, Јукаве, Фермија и многих других, са којима је човечанству отворен поглед у сасвим нови свет–свет нуклеарне физике. Као и све што физика проучава, сазнања и открића нуклеарне физике су убрзо нашла и практичну примену.

Као један будући носилац звања нуклеарног физичара, могу рећи да ме је од, не тако давног сусрета са елементима нуклеарне физике, она у први мах и одушевила и била помало тешка за схватање. На студијама физике моје схватање нуклеарне физике је узнапредовало, а интерес за дубље проучавање пробудио. Нарочито ме одушевила чињеница колико информација и неистражених поља лебди у ваздуху... То је један од разлога зашто сам одабрала поље нуклеарне физике за даље усавршавање.

Други разлог, рекла бих, не и мање битан, је заслуга мојих професора са Катедре за нуклеарну физику. Не бих их посебно именовала, да не бих неког изоставила, али морам споменути да је право задовољство имати такве предаваче, који су стручњаци, али и посвећени студентима, увек спремни да помогну и посаветују. Сматрам да је у данашње време то реткост, те им се овом приликом захваљујем.

Посебно бих се захвалила ментору, др Јовани Николов, на одабиру теме, на безусловној помоћи, ентузијазму, инспирацији и "ветру у леђа".

САДРЖАЈ

УВОД	1
І ТЕОРИЈСКИ ДЕО РАДА	6
1. ПРИРОДНА РАДИОАКТИВНОСТ	7
1.1. РАДИОАКТИВНИ НИЗОВИ	10
1.2. РАДИОАКТИВНА РАВНОТЕЖА	16
2. ПРОЦЕНА РАДИОАКТИВНОСТИ ВОДЕ	18
3. РАДОН	21
3.1. ПОРЕКЛО И КАРАКТЕРИСТИКЕ РАДОНА-222	22
3.2. РАДОН У ВАЗДУХУ И У ВОДИ	24
3.3. ЗДРАВСТВЕНИ РИЗИЦИ	26
3.4. МЕТОДЕ УКЛАЊАЊА РАДОНА ИЗ ВОДЕ	26
II ЕКСПЕРИМЕНТАЛНИ ДЕО РАДА	28
4. МЕРНЕ ТЕХНИКЕ	29
4.1. АЛФА СПЕКТРОМЕТРИЈСКА МЕТОДА	29
4.1.1. ДЕТЕКТОР RAD7	30
4.1.2. ОПИС МЕТОДЕ	32
4.2. АЛФА СПЕКТРОМЕТРИЈА ТЕЧНИМ СЦИНТИЛАЦИОНИМ МЕТОДОМ	34
4.2.1. СЦИНТИЛАЦИОНИ ДЕТЕКТОРИ	35
4.2.2. ФОТОМУЛТИПЛИКАТОРИ	37
4.2.3. СЦИНТИЛАЦИОНИ ПРОЦЕСИ У КОКТЕЛИМА	
4.2.4. ПРОЦЕСИ КОЈИ ОМЕТАЈУ LSC ДЕТЕКЦИЈУ	
4.2.5. LSC ДЕТЕКТОР QUANTULUS 1220 [™]	41
4.2.6. ОПИС МЕТОДЕ	43
4.3. ГАМА-СПЕКТРОМЕТРИЈСКА МЕТОДА	47
4.3.1. ОСОБИНЕ СПЕКТРА ГАМА ЗРАЧЕЊА	48
4.3.2 ФАКТОРИ КОЈИ УТИЧУ НА ОБЛИК СПЕКТРА	50
4.3.3. HPGE ДЕТЕКТОРИ	51

4.3.4. ОПИС МЕТОДЕ	54
5. ПРОБЛЕМИ УЗОРКОВАЊА	56
6. МЕРНЕ ЛОКАЦИЈЕ	60
7. РЕЗУЛТАТИ И ДИСКУСИЈА	62
8. ЗАКЉУЧАК	70
ЛИТЕРАТУРА	73
БИОГРАФИЈА	77
КЉУЧНА ДОКУМЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА	78

УВОД

Зрачење које је присутно свакодневно потиче од природних и вештачких радионуклида. Природни радионуклиди су присутни свуда у околини (нпр. уранијум, торијум, калијум-40). Највећи удео излагања становништва зрачењу потиче од природних радионуклида (Слика 1.1). Природна радиоактивност потиче од нестабилних радиоизотопа који су били присутни приликом формирања планете Земље, те су због свог дугог времена полураспада (>10⁸ година) присутни и дан данас. У природи постоје таква три радиоактивна изотопа (²³⁸U, ²³⁵U и ²³²Th) чијим распадима настају други радиоизотопи (о чему ће бити детаљније речи), као и ⁴⁰К који није припадник ова три низа, али има дуго време полураспада. Поред радиоизотопа који настају сукцесивним распадима у радиоактивним низовима, значајну компоненту у изложености природној радиоактивности имају и космички радиоизотопи (Табела 1.1), који настају у стратосфери и горњим деловима тропосфере у интеракцијама протона, неутрона, α-честица, мезона и других честица са кисеоником, аргоном или азотом. Најзначајнији удео у радиоактивности која потиче од космогених радиоизотопа имају ³H, ¹⁴C, ⁷Be и ²²Na.

Радионуклид	Време	Радионуклид	Време
	полураспада		полураспада
$^{3}\mathrm{H}$	12,3 год.	³² P	14,3 дана
⁷ Be	53,3 дана	³³ P	25,3 дана
¹⁰ Be	1,6·10 ⁶ год.	³⁵ S	87,5 дана
¹⁴ C	5730 год.	³⁸ S	2,8 h
²² Na	2,6 год.	^{34m} Cl	32 min
²⁴ Na	15 h	³⁶ Cl	3·10 ⁵ год.
²⁸ Mg	20,9 h	³⁸ Cl	37,2 min
²⁶ Al	7,4·10 ⁵ год.	³⁹ Cl	55,6 min
³¹ Si	2,6 h	³⁹ Ar	269 год.
³² Si	172 год.	⁸¹ Kr	2,3·10 ⁵ год.
¹²⁹ I	1,6·10 ⁷ год-	⁸⁵ Kr	10,7 год.

Табела 1.1. Природни радионуклиди који настају интеракцијом космичког зрачења са горњим деловима атмосфере (*Tykva R, Berg D, 2004*).

Осим природних радионуклида, са развојем нуклеарне физике и технологије, антропогеним активностима произведени су и вештачки радионуклиди. Главни извори компоненте зрачења која потиче од вештачке радиоактивности су акцелератори честица, нуклеарно оружје и нуклеарни реактори. Циклотрони се користе у медицини за производњу краткоживећих изотопа: ²⁰¹Tl, ¹²³I, ⁸¹Rb \rightarrow ^{81m}Kr, ⁶⁷Ga, ⁶⁸Ge \rightarrow ⁶⁸Ga, ¹⁸F, ¹¹C, ¹³N, ¹⁵O, и они углавном имају локални значај са становишта утицаја на животну средину. Употреба нуклеарног оружја је кроз активације уранијумске бомбе у Хирошими и плутонијумске бомбе у Нагасакију 1945. године и 423 нуклеарне пробе у атмосфери, већином у северној

хемисфери, вршених до 1980. године, ослободила значајну количину радионуклида (неки од њих су ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr, ⁹⁵Zr, ¹³⁶Cs, ¹³⁷Cs, ³H, ¹⁴C, ⁵⁵Fe, ²⁴²Pu, ^{242m}Am, итд). Радионуклиди који се произведу у нуклеарним реакторима потичу од два процеса, нуклеарне фисије и активације неутронима или γ-квантима. У процесима нуклеарне фисије настају већином краткоживећи радиоизотопи, изузев ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs. Активацијом неутрона и γ-квантима у самом гориву, као и у материјалима који се користе као модератори неутрона или чине конструкцију неутрона настају радионуклиди као што су ³H, ¹⁴C, ⁵¹Cr, ⁹⁵Zr, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, итд (*Tykva R, Berg D, 2004*).

UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radioation, 2000) је проценила да је глобална годишња доза којој је изложен човек, а која потиче од природних радионуклида 2,4 mSv/годишње. У појединим деловима света постоје велике варијације у просечној годишњој дози која може бити и до 10 пута већа од већ поменуте процењене дозе. Разлика у дозама потиче од мноштва фактора, као што су надморска висина, количина и тип радионуклида у земљишту, састава радионуклида у ваздуху, храни и пијаћој води, као и количина која је унета у организам путем инхалације или ингестије ((WHO), World Health Organization, 2008).



Слика 1.1. Извори и дистрибуција просечног излагања зрачењу за светску популацију

Пијаћа вода контролисаног квалитета је есенцијална за здравље и компонента ефикасне заштите здравља, а поред тога и основно људско право. Контролисање квалитета воде је битно како на локалном, тако и на регионалном и националном нивоу. У неким земљама, вршена су испитивања која су показала да улагање у водене санитете и контролисање воде уноси значајно смањење економских издатака, с обзиром да редукује здравствене трошкове. Светска здравствена организација (*World Health Organisation*-WHO) је објавила 1983-1984. године и 1993-1997. године прво и друго издање *Guidelines for Drinking-water Quality* (Водич квалитета пијаће воде). Квалитет воде се може испитивати и контролисати са више аспеката:

- микробиолошког,
- хемијског,
- радиолошког.

Радиолошки хазард воде за пиће потиче од јонизујућег зрачења које емитују радиоактивни изотопи. Радиоактивност пијаћих вода може бити антропогеног порекла (испуштањем радиоактивног отпада или пробе нуклеарног оружја) или природног порекла (настаје растварањем гасова и минерала и укључује изотопе урана, торијума и њихове потомке ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²²²Rn, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po) *(Montaña et al, 2013)*. Мониторинг воде има за циљ мерење садржаја природних радионуклида–радијумових изотопа ²²⁶Ra и ²²⁸Ra, ²²²Rn и његових краткоживећих потомака, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po, ⁴⁰K и уранијумових изотопа (торијум није растворљив у води), као и детекцију вештачких радионуклида, претежно ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs *(L'Annunziata M., 2012; Janković et al, 2012)*.

Радиоактивни изотопи у пијаћој води се могу појавити из следећих разлога:

• природни радионуклиди (радионуклиди који настају распадом уранијума и торијума), нарочито радијум-226/228 и неколико других;

• технолошки процеси који укључују материјале са садржајем природних радионуклида (нпр. минирање и обрада минералних стена или производња фосфатних ђубрива);

 радионуклиди који настају као продукт у постројењима која производе нуклеарна горива;

• вештачки произведени радионуклиди који доспевају у пијаћу воду, а настају као резултат медицинске и индустријске употребе и одлагања радиоактивног материјала;

• претходна отпуштања радионуклида у околину, укључујући и у изворе воде.

Ти хазарди су ретко од значаја и излагање радијацији која потиче од пијаће воде се мора процењивати засебно у односу на друге изворе. Приступ контролисању радиолошког хазарда има две фазе:

• иницијално одређивање алфа и/или бета активности у циљу одређивања да ли је концентрација активности (у Bq·l⁻¹) испод прописаног нивоа услед чега даље активности нису потребне;

• уколико је одређена концентрација активности изнад прописаног нивоа, потребна су даља одређивања концентрација индивидуалних радионуклида и поређења са специфичним

прописаним нивоима. У Републици Србији, према (*Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hranu, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet*), укупна алфа активности не сме да пређе 0,5 Bq·I⁻¹, а укупна бета активност 1 Bq·I⁻¹. Ако су вредности изнад овог нивоа, неопходно је неком другом методом утврдити који су то појединачни радионуклиди и у којој количини су присутни у води.

Ризик од радона у пијаћој води је обично низак у поређењу са укупним инхалираним радоном. Већа излагања радону потичу од инхалације из земљишта, јер радон као гас лако дифундује кроз зидове. Радон из подземних вода мало повећава укупну концентрацију активности, али може бити значајан у регионима где подземна вода продире у подруме. Тренутне смернице су засноване на:

• препоручена референтна доза (RDL-Recommended Reference Dose Level) износи 0,1 mSv за период од једне године конзумације пијаће воде. RDL од 0,1 mSv је еквивалентно 10% од лимита дозе за популацију препоручено од стране ICPR (*International Commission on Radiological Protection*) (1991) и IAEA (*International Atomic Energy Agency*) (1996), што је прихваћено од већине WHO чланица, Европске комисије, FAO (*Food and Agriculture Organization*) и WHO;

• дозним коефицијентима за одрасле, обезбеђеним од стране ICPR.

Допринос пијаће воде тоталном излагању је обично веома мали и највише потиче од природно заступљених радионуклида у распадима уранијума и торијума. Радионуклиди који потичу из нуклеарних горива и из медицинске и индустријске употребе ипак могу повећати њихову концентрацију. Њихов допринос је ограничен регуларном контролом извора радионуклида.

Постоје докази, како из студија које су укључивале људе, тако и из студија спроведених на животињама, да излагање ниским до дозвољеним дозама може довести до учесталије појаве канцера. Студије спроведене на животињама су указале да брзине генетских модификација могу бити повећане услед повећања излагања радијацији. Уколико је концентрација радионуклида испод очекиваног нивоа (еквивалентног препорученој дози од 0,1 mSv/години) не очекују се последице по здравље ((WHO), World Health Organization, 2008).

Из свега претходно изнетог закључује се да је значајно познавати радиолошки састав воде за пиће. С обзиром да постоји потенцијалан ризик по здравље људи који конзумирају воду за пиће која природно у себи садржи повећане концентрације активности ²²²Rn, посебна пажња се посвећује развоју, што је могуће прецизније и поузданије, методе за мерење радона

у води. Управо то је и тема овог рада, при чему је посебна пажња посвећена различитим техникама узорковања воде јер управо од тога зависи да ли ће узорак који се анализира бити репрезентативан и да ли ће добијени резултат бити реалан. У раду су поред две различите технике узорковања приказани и реални проблеми који могу настати на терену попут немогућности да узорак буде одмах измерен, испитано је колико дуго узорак сме да стоји пре мерења, а да се и даље уз адекватну корекцију на период полураспада добије реалан резултат, што је посебно значајно јер радон има кратак период полураспада (3,8235 (3) дана) (*http://atom.kaeri.re.kr/nuchart/*). Кроз поређење три различите методе мерења уведена је нова, гама-спектрометријска метода мерења радона у води у лабораторијску праксу и испитане су предности и мане (ограничења) све три методе. У ту сврху коришћена је различита опрема за мерење: алфа спектрометар, течни сцинтилациони детектор и германијумски детектор.

І ТЕОРИЈСКИ ДЕО РАДА

1. ПРИРОДНА РАДИОАКТИВНОСТ

Природна радиоактивност је појава спонтане трансформације језгра при чему се мења његов састав или његово енергијско стање. Појава радиоактивности је откривена 1896. године, када је Анри Бекерел запазио необичну појаву—наиме, соли уранијумове руде су емитовале зрачење и када нису биле изложене дејству спољашњег зрачења. Зраке емитоване распадом језгара је најпре класификовао Радерфорд и назвао их α, β и γ зраци.

Са становишта радиоактивности, сва језгра можемо поделити у две велике групе: она која не подлежу радиоактивном распаду (или имају сувише дуго време полураспада)стабилна језгра и она која подлежу радиоактивном распаду—нестабилна језгра или радионуклиди. Од више од 3000 познатих атомских језгара, само 266 су стабилни.

Процес радиоактивности је, као што је речено, спонтан процес, на који се не може утицати спољашњим параметрима (притиском, температуром...) и подлеже искључиво законима вероватноће. Према томе, не можемо одредити тачан тренутак распада неког језгра, већ само вероватноћу да ће се дато језгро распасти. Услед тога се у нуклеарној физици користе специфичне физичке величине уведене да опишу процес радиоактивног распада.

Вероватноћа да ће се неко језгро распасти у јединици времена назива се *константа радиоактивног распада (\lambda)*. Она је карактеристика сваког језгра, а вредности јој се крећу у широком опсегу. Експериментално се може израчунати као:

$$\lambda = \frac{\left[\frac{\Delta N}{\Delta t}\right]}{N},$$
 1.1

где је N укупан број радиоактивних језгара у посматраном узорку у почетном тренутку, а ΔN број језгара који се распао у временском интервалу Δt .

Преко константне радиоактивног распада може се дефинисати још једна величинасредњи живот нестабилног језгра (т), повезаних релацијом:

$$\tau = \frac{1}{\lambda}$$
 1.2

Експерименталним подацима добијених на основу посматрања и праћења динамике великог броја распада, дошло се до правилности које су важиле за све посматране радионуклиде, на основу чега је дефинисан закон радиоактивног распада. Ако је у неком тренутку t у узорку постојало N радиоактивних језгара, број распада у одређеном временском интервалу dt је:

$$dN = -\lambda \cdot N \cdot dt \tag{1.3}$$

Јована Кнежевић

Интеграцијом горње једначине, уз почетни услов $N(t=0)=N_0$, где је N_0 број радиоактивних језгара у почетном тренутку (t=0) добија се закон радиоактивног распада:

$$\frac{dN}{N} = -\lambda \cdot dt \tag{1.4}$$

$$\int \frac{dN}{N} = -\int \lambda \cdot dt$$
 1.5

$$\ln N = -\lambda \cdot t \tag{1.6}$$

$$N = e^{-\lambda \cdot t} \cdot c \tag{1.7}$$

$$N(t=0) = N_0 \Rightarrow c = N_0 \tag{1.8}$$

Коначно се за закон радиоактивног распада добија израз:

$$N = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \tag{1.9}$$

Графички приказ закона радиоактивног распада је дат на слици 1.2.



Слика 1.2. Графички приказ закона радиоактивног распада у логаритамској скали

Број језгара који се распадне у јединици времена се назива *активност узорка (А)*. Из закона радиоактивног распада, активност се може изразити као:

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N \tag{1.10}$$

Активност неког узорка такође опада експоненцијално у току времена, што се добија множењем леве и десне стране закона радиоактивног распада константом радиоактивног распада:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \tag{1.11}$$

Време за које се број почетних језгара смањи на половину (односно, за које се распадне половина почетног броја језгара) се назива *време полураспада (T*_{1/2}). Веза између константе радиоактивног распада и времена полураспада се може наћи полазећи од закона радиоаткивног распада и узимајући у обзир (*Krmar, 2013; Marinkov, 1976*):

$$t = T_{1/2}$$
 1.12

$$N(t) = \frac{N_0}{2} \tag{1.13}$$

$$N = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \Rightarrow \frac{N_0}{2} = N_0 \cdot e^{-\lambda T_{1/2}}$$
 1.14

$$\ln\frac{1}{2} = -\lambda T_{1/2}$$
 1.15

$$\ln 2 = \lambda T_{1/2} \tag{1.16}$$

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \tag{1.17}$$

1.1. РАДИОАКТИВНИ НИЗОВИ

Радиоактивна језгра се могу поделити и на природна и вештачка. Природна радиоактивна језгра могу бити:

• примордијалног порекла-настају распадом три радионуклида чије је време полураспада реда величине постојања Земље. Ови радионуклиди великом већином припадају радиоактивном низовима који започињу распадима 235 U, 238 U и 232 Th, али постоје и радионуклиди који не припадају овим низовима, али имају дуго време полураспада. Најпознатији међу њима је 40 K, чији је период полураспада 1,4·10⁹ година;

• *космичког порекла*-настају интеракцијом космичког зрачења са атмосфером, а најпознатији су ⁷Be, ¹⁴C, ³H.

Дакле, највећи број природних радионуклида настаје у радиоактивном низовима. Постоје три радиоактивна низа која се називају:

- *уранијумов низ*, који започиње распадом ²³⁸U,
- *актинијумов низ*, који започиње распадом ²³⁵U, и
- *торијумов низ*, који започиње распадом²³²Th.

Сваки радиоактивни низ се састоји од сукцесивних распада, при чему су заступљена сва три облика радиоактивног распада (алфа, бета и гама) и завршава се стабилним изотопом (*Krmar*, 2013):

Уранијумов низ, дакле, започиње распадом 238 U при чему се емитује алфа честица и настаје нестабилно језгро 234 Th, који је такође нестабилан и бета распадом прелази у нестабилни 234 Pa. Распади се настављају све док не настане стабилно језго 206 Pb, којим се овај низ завршава. Уранијумов низ са назначеним облицима распада је дат на Слици 1.3.



Слика 1.3. Уранијумов низ.

Актинијумов низ започиње алфа распадом ²³⁵U, а завршава се стабилним ²⁰⁶Pb и приказан је на Слици 1.4.



Слика 1.4. Актинијумов низ

Торијумов низ започиње распадом Th²³² и приказан је на Слици 1.5.



Слика 1.5. Торијумов низ

При сваком радиоактивном распаду једног радионуклида у низу настају нови радионуклиди, док не настане стабилан изотоп, којим се радиоактивни низ завршава. Поставља се питање како одредити број језгара, период полураспада или константа распада било ког члана радиоактивног низа. Размотримо следећи случај:

$$N_1 \xrightarrow{\lambda_1} N_2 \xrightarrow{\lambda_2} N_3$$
 1.18

Дакле, посматрамо низ од три члана, који се завршава стабилним изотопом. У овом низу се N_1 назива предак, чија је константа распада λ_1 , а N_2 потомак са константом распада λ_2 . Овакав процес се може описати са три диференцијалне једначине:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \tag{1.19}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \tag{1.20}$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 \tag{1.21}$$

Системом једначина 1.19-1.21 описан је један радиоактивни низ од три члана. Релацијом 1.19 дата је активност претка N_1 , релацијом 1.20 описана је промена броја језгара потомка N_2 , а релација 1.21 представља промену броја језгара стабилног изотопа N_3 .

Број језгара претка је дат законом радиоактивног распада и ако се уврсти у релацију 2, следи:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2$$
1.22

односно,

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} \mathrm{e}^{-\lambda_1 t}$$
 1.23

множењем релације 1.23 са $e^{\lambda_2 t}$ добија се:

$$\frac{d}{dt}(N_2 e^{\lambda_2 t}) = \lambda_1 N_{01} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t}$$
1.24

Интеграцијом последњег израза добија се:

$$N_2 e^{\lambda_2 t} = \lambda_1 N_{01} \int e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} dt = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} + c, \qquad 1.25$$

где је *с* константа интеграције. Уколико помножимо израз 1.25 са $e^{-\lambda_2 t}$, добија се израз за број језгара потомка:

$$N_{2} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} N_{01} e^{-\lambda_{1} t} + c e^{-\lambda_{2} t}$$
 1.26

Константа интеграције се одређује из почетних услова: у почетном тренутку (t = 0) је постојало N_{02} језгара потомка, те се за вредност интеграционе константе добија:

$$C = N_{02} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01}$$
 1.27

Ако добијену вредност константе интеграције уврстимо у 1.26, за број језгара потомка се добија израз:

$$N_{2} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} N_{01} e^{-\lambda_{1} t} + \left(N_{02} - \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} N_{01} \right)$$
 1.28

$$N_{2} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} N_{01} \left(e^{-\lambda_{1}t} - e^{-\lambda_{2}t} \right) + N_{02} e^{-\lambda_{2}t}$$
 1.29

Последњи израз даје зависност броја атома потомка насталих радиоактивним распадом претка *N*₁ од времена.

Да бисмо добили и зависност броја језгара трећег члана низа, стабилног изотопа, потребно је да израз за N₂ уврстимо у диференцијалну једначину 1.20:

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 = \lambda_2 \left\{ \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{02} e^{-\lambda_2 t} \right\}$$
 1.30

$$\frac{dN_3}{dt} = \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} \mathrm{e}^{-\lambda_1 t} + \left(\lambda_2 N_{02} - \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01}\right) \mathrm{e}^{-\lambda_2 t}$$
 1.31

Интеграцијом се добија:

$$N_{3} = \left(\frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}}N_{01} - N_{02}\right)e^{-\lambda_{2}t} - \frac{\lambda_{2}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}}N_{01}e^{-\lambda_{1}t} + D$$
 1.32

Интеграциона константа D се одређује из почетних услова (t = 0), а то је да је у почетном тренутку постојало N_{03} језгара трећег члана низа. Применом почетних услова, за константу D се добија:

$$D = N_{01} + N_{02} + N_{03} ag{1.33}$$

Уврштавањем константе *D* добија се временска функција броја језгара трећег члана низа:

$$N_3 = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} - N_{02}\right) e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} + N_{01} + N_{02} + N_{03}$$
 1.34

$$N_{3} = N_{03} + N_{02} \left(1 - e^{-\lambda_{2}t} \right) + N_{01} \left(1 - \frac{\lambda_{2}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} e^{-\lambda_{1}t} + \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} e^{-\lambda_{2}t} \right)$$
 1.35

У пракси се чешће користе почетни услови:

$$N_{01} \neq 0 \tag{1.36}$$

$$N_{02} = N_{03} = 0 1.37$$

Применом ових услова на једначине 1.29 и 1.35, добија се нешто једноставнији облик

$$N_{2} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} N_{01} \left(e^{-\lambda_{1}t} - e^{-\lambda_{2}t} \right) = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} N_{01} e^{-\lambda_{1}t} \left(1 - e^{(\lambda_{1} - \lambda_{2})t} \right)$$
 1.38

$$N_3 = N_{01} \left(1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} \right)$$
 1.39

Исто разматрање се може применити на радиоактивни низ од n чланова. Такав систем се описује са n диференцијалних једначина.

Посматрајмо радиоактивни низ од n чланова. Процес распада се може описати са n диференцијалних једначина:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \tag{1.40}$$

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

$$\vdots$$
1.41

$$\frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1}N_{n-1} - \lambda_n N_n \tag{1.42}$$

Овај систем диференцијалних једначина описује распаде у радиоактивном низу чији пти члан није радиоактиван, тј. $\lambda_n = 0$. Систем се решава уз почетне услове:

$$t = 0$$
 1.43

$$N_1 = N_{01}, N_{02} = N_{03} = N_{04} = \cdots \cdot N_{0n}$$
 1.44

Број језгара п-тог члана низа дат је формулом:

$$N_n(t) = C_1 \cdot e^{-\lambda_1 t} + C_2 \cdot e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n \cdot e^{-\lambda_n t}$$
 1.45

Интеграционе константе С₁, С₂,....С_n, су одређене наведеним почетним условима (*Marinkov*, 1976):

$$C_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_n}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1) \cdots (\lambda_n - \lambda_1)} N_{01}$$
 1.46

$$C_2 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_n}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \cdots (\lambda_n - \lambda_2)} N_{01}$$
1.47

$$C_n = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_n}{(\lambda_1 - \lambda_n)(\lambda_2 - \lambda_n) \cdots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} N_{01}.$$
 1.48

1.2. РАДИОАКТИВНА РАВНОТЕЖА

Појам радиоактивне равнотеже везан је за услов dN/dt=0. Применом овог услова на све чланове низа, добија се да се број језгара било ког члана низа не мења у току времена. Односно, то је тренутак времена када се створи онолико језгара колико се и распадне. Гледајући строго математички, овај услов никада није испуњен. Увођењем λ =0, подразумева се језгро које није радиоактивно. Међутим, могућа су стања која се, уз апроксимацију, могу сматрати да су стања блика радиоактивној равнотежи. То је случај када период полураспада претка тежи бесконачности или је знатно већи од периода полураспада потомка. Такав је пример ²³⁸U, са периодом полураспада, 4,5·10⁹ година, док је период полураспада његовог потомка знатно краћи, те се N₁ може сматрати константним, а λ_1 =1/T_{1/2}→0, чиме је услов dN₂/dt=0 испуњен. За овај тип равнотеже може се формулисати услов

$$(T_{1/2})_1 \gg (T_{1/2})_2 \Leftrightarrow (\lambda_{1/2})_1 \ll (\lambda_{1/2})_2$$
 1.49

тада важи:

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_n N_n \tag{1.50}$$

Релација 1.50 се може користити за одређивање периода полураспада претка, када је период полураспада потомка познат.

Коришћењем датих једначина, може се написати израз за активност потомка која гласи:

$$A = \lambda_1 N_{01} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_2 t}\right) \tag{1.51}$$

На основу једначине 1.51 може се закључити да ће се после неколико периода полураспада (6-7) активност потомка изједначити са активношћу претка. Овакав тип равнотеже назива се *секуларна* или *трајна радиоактивна равнотежа* (Слика 1.6).

Други тип равнотеже следи из услова:

$$\lambda_1 < \lambda_2$$
 , 1.52

тј. када константа распада λ_2 није много већа од константе λ_1 , али се знатно разликују. Ако бисмо овај услов превели на односе времена полураспада, добија се:

$$(T_{1/2})_1 > (T_{1/2})_2$$
 1.53

У том случају је:

4

$$e^{-\lambda_2 t} < e^{-\lambda_1 t}, \qquad 1.54$$

па се због тога члан у једначини 1.51 може занемарити. Под овим условима број језгара потомка износи

$$N_2 \cong \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} \mathrm{e}^{-\lambda_1 t}$$
 1.55

Према једначини 1.55, када је радиоактивна равнотежа једанпут успостављена, апсолутна активност опада са периодом полураспада претка.

Како је $N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t}$, однос броја језгара потомка и претка је дат релацијом:

$$\frac{N_2}{N_1} \cong \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \tag{1.56}$$

Однос мерених активности при радиоактивној равнотежи дат је као:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} \cong \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}$$
1.57

На основу релације 1.57 може се закључити да је активност потомка већа од активности претка $\frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}$ пута. Овај тип равнотеже назива се *транзитна радиоактивна равнотежа* (Слика 1.6) (*Marinkov*, 1976).



Слика 1.6. Графички приказ секуларне и транзитне радиоактивне равнотеже.

2. ПРОЦЕНА РАДИОАКТИВНОСТИ ВОДЕ

Радиоактивност воде може да се процењује у узорцима:

• кишнице, у којима се прати ниво трицијума, подаци се скупљају у дужем временском периоду и користе се као улазни параметри у хидролошким истраживањима;

• подземних вода, из разлога што велики део популације користи изворе подземних вода, у виду плитких бунара, јавних чесми или водовода. Подземне воде су, поред контаминације отпадним водама, изложене и природној радиоактивности из земљишта и стена;

• површинских вода, у које се контролисано испуштају радиоактиви отпади. Доминантни радионуклиди у површинским водама су ³H (0,02-0,1 Bq·l⁻¹), ⁴⁰K (0,04-2 Bq·l⁻¹), ²²⁶Ra, ²²²Rn и њихови краткоживећи изотопи (<0,4-2 Bq·l⁻¹).;

• пијаћих вода, посебно значајно због заштите становништва.

Прописани нивои за радионуклиде у пијаћој води су приказани у Табели 2.1 за природне радионуклиде и оне који су доспели у околину као резултат тренутних или прошлих активности. Они се примењују и за радионуклиде који су се појавили у нуклеарним акцидентима у периоду од преко годину дана. Концентрације активности добијене у Табели 2.1 одговарају RDL-у од 0,1 mSv/години. Нивои су израчунати према једначини ((WHO), World Health Organization, 2008):

$$GL = \frac{IDC}{h_{ing} q} , \qquad 2.1$$

где су:

- GL [Bq·l⁻¹] прописани ниво датог радионуклида у пијаћој води;
- IDC индивидуални дозни критеријум, еквивалентан 0,1[mSv·god⁻¹];
- $h_{ing}[mSv \cdot Bq^{-1}] дозни коефицијент ингестије за одрасле [mSv \cdot Bq^{-1}];$
- q годишња запремина унете пијаће воде, претпостављена на 730 [l·god⁻¹].

	GL (Bq·l ⁻¹)
Радионуклид	
²³⁸ U	10
²²⁶ Ra	1
²³² Th	1
¹³⁷ Cs	10

Табела 2.1. GL за радионуклиде у пијаћој води ((WHO), World Health Organization, 2008)

Виши дозни коефицијенти израчунати за децу не доводе до значајних повећања дозе услед мање запремине изложене зрачењу. Због тога се доза од 0,1 mSv годишње за конзумацију пијаће воде примењује независно од узраста особе ((WHO), World Health Organization, 2008).

Процес идентификовања индивидуалних радионуклида и одређивање њихових концентрација укључује софистициране и скупе анализе, које у редовним условима нису потребне јер је у највећем броју случајева концентрација радионуклида веома ниска. Практичнији приступ је коришћење *screening* процедуре, која прво израчунава укупну радиоактивност алфа или бета зрачења, без одређивања појединачних радионуклида.

Screening ниво за пијаћу воду испод које се не захтевају додатне процене је 0,5 Bq·l⁻¹ за алфа активност и 1 Bq·l⁻¹ за бета активност (Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hranu, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet). Граница за бета активности у најгорем могућем случају (222 Ra) води до дозе блиске RDL од 0,1 mSv годишње. *Screening* ниво за алфа активност је 0,5 Bq·l⁻¹ (уместо пређашњих 0,1 Bq·l⁻¹) јер ова концентрација даје вредности ближе RDL.

Уколико је *screening* ниво повећан, потребно је идентификовати појединачне радионуклиде и измерити њихове концентрације активности. Уколико је следећа формула задовољена, нису потребна додатна истраживања:

$$\sum_{i} \frac{C_i}{GL_i} \le 1,$$
 2.2

где су

• С_i – измерена концентрација активности радионуклида i;

• *GL_i* – прописани ниво (Табела 2.1) за радионуклид *i* који резултује препорученом дозом од 0,1 mSv годишње уколико се уноси 21 дневно у току једне године.

Укупна унесена ефективна доза (*GD*) је једнака суми доза примљених уносом појединачних радионуклида, *GD_i*:

$$GD = \sum_{i} GD_{i} = \sum_{i} h(g_{i})C_{i}q,$$
2.3

где фигурише $h(g_i)$, законски прописан дозни конверзиони фактор за одређени радионуклид код одраслих.

Уколико је сума већа од 1, RDL од 0,1 mSv ће бити повећана само уколико излагање траје током читаве године. Дакле, такав узорак сам по себи не даје закључак да вода није за коришћење, али указује да су потребне додатне анализе и додатна узорковања. Потребно је поновити *screening* бруто бета и алфа активности, затим анализа појединачних радионуклида уколико је измерена вредност изнад препоручене (1 Bq·I⁻¹, односно 0,5 Bq·I⁻¹). Бруто измерене вредности бета активности укључују и допринос калијума-40, бета емитера који је природни радиоизотоп. Калијум је неопходан елемент за људске организме и апсорбује се већином из уношене хране. ⁴⁰K се не акумулира у телу, али се одржава на константном нивоу. Специфична активност ⁴⁰K је 30,7 Bq·I⁻¹ калијума. Међутим, није сво зрачење које потиче од ⁴⁰K бета зрачење. Бета активност ⁴⁰K је 27,6 Bq·I⁻¹од стабилног калијума, што је фактор који треба узети при прорачуну бета активности ⁴⁰K (*(WHO), World Health Organization, 2008)*.

Европска комисија је прописала да је препоручени ниво радона у води 100 $\operatorname{Bq} \cdot I^{-1}$ (*European Commission, 2001*). У нашој земљи не постоји законска регулатива која се односи на ниво радона у води, али је у току акт у припреми који садржи прописани ниво од 100 $\operatorname{Bq} \cdot I^{-1}$ (*http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/akta-u-pripremi.htm*).

3. РАДОН

Радон је испрва примећен у првој деценији 1900. године у узорцима воде које је проучавао Томсон. Најпре је владало мишљење, како међу научницима, тако и међу лекарима, да радиоактивни елементи имају лековита својства. Топле воде које су имале високу концентрацију радона су проглашене чудотворнима. С временом, наука је дошла до закључка да радиоактивност са собом носи и штетне последице.

Педесетих година прошлог века доведени су у везу радон и његови потомци са повећањем рака плућа код рудара. Било је примећено да и подземне воде садрже високе концентрације активности радона. Деценију касније, научници су почели да се баве проблематиком ефеката инхалираног и ингестираног радона, посматрајући утицај на дигестивне органе и крвне судове. Већ седамдесетих година, радон је био препознат као битна компонента природне радиоактивности којој је популација свакодневно изложена. Осамдесетих година започињу акције у циљу смањења излагања радону.

Генерално се више пажње посвећује присуству радона у ваздуху, с обзиром да је процењено да је ризик од добијања рака плућа услед инхалације радона знатно већи од ризика добијања рака стомака услед ингестије радона. Међутим, мерења концентрација активности ²²²Rn су врло честа због његове присутности и релативно високе специфичне активности, једноставне потребне инструментације, али и значаја у хидрогеолошким студијама и редовним контролама у оквиру спровођења заштите од зрачења.

3.1. ПОРЕКЛО И КАРАКТЕРИСТИКЕ РАДОНА-222

Радон је племенити гас, без боје, мириса и укуса. Сваки од три радиоактивна низа у природи садржи по један изотоп радона:

• У уранијумовом низу (²³⁸U) распадом ²²⁶Ra настаје ²²²Rn са период полураспада 3,8235(3) дана (*http://atom.kaeri.re.kr/nuchart/*) (Слика 3.1). Представља најзначајнији радонов радиозотоп и под термином "радон" се најчешће и подразумева овај изотоп.



Слика 3.1. Шематски приказ алфа распада ²²⁶Ra при чему настаје ²²²Rn.

• У торијумовом низу (²³²Th) настаје ²²⁰Rn, који се често назива "торон". Овај радиоизотоп има период полураспада 54,5 s.

• У актинијумовом низу (²³⁵U) настаје ²¹⁹Rn, који се често назива "актинон". Период полураспада актинона је 3,92 s, врло мало је заступљен у природи (због малог садржаја изотопа урана ²³⁵U) и његов допринос озрачењу људи је занемарљив.

Изотоп ²²²Rn спада у алфа емитере, са енергијом алфа честица од $E_{\alpha 1} = 5,489$ MeV ($I_{\alpha 1} = 99,9$ %) и $E_{\alpha 1} = 5,489$ MeV($I_{\alpha 1} = 0,1$ %), што су вредности енергија довољне да се изврши јонизација неколико хиљада атома. Са становишта медицинске физике, битне особине радона су: време полуелиминације из плућа је 30 минута, а из осталих ткива 15 минута. Распадом радона настају потомци који су алфа емитери (Слика 3.2) и који имају време полураспада довољно дуго да се задрже у организму и таложе, како на уласку у респираторни систем, тако и у самим плућима.



Слика 3.2. Део уранијумовог ланца који приказује распад ²²⁶Ra у ком настаје ²²²Rn. Распадом радона настају потомци, од којих су, са становишта медицинске физике, најзначајнији алфа емитери са перидом полураспада довољно дугим да се задрже у човековом организму.

Као што се може видети на слици, распадом радона настају краткоживећи потомци 218 Po, 214 Pb, 214 Bi, 214 Po и дугоживећи потомак 218 Pb са периодом полураспада од 22,3 године. Алфа распадом радона, са енергијом алфа честице 5,49 MeV, настаје 218 Po. Полонијум је метал чији се атоми лепе за честице прашине или се таложе на површинама са којима дође у контакт, као што су зидови просторија, намештај, али и унутрашњост плућа. Настали полонијум има кратак период полураспада од 3,05 минута, а затим се алфа распадом распада на нестабилан изотоп 214 Pb. Емитована алфа честица има енергију од 6,0 MeV. 214 Pb је у чврстом агрегатном стању са периодом полураспада 26,8 минута и распада се емисијом бета честице и гама зрака на 214 Bi. 214 Bi је такође у чврстом агрегатном стању и бета емитер са перидом полураспада од 19,8 минута и његовим распадом настаје 214 Po. Овај изотоп полонијума има период полураспада само 164 милисекунде и представља алфа емитер, са енергијом емитоване алфа честице од 7,69 MeV. Распада се на нестабилан изотоп олова, 210 Pb, који је дугоживећи радиоизотоп са периодом полураспада од 22,3 године.

Радонови краткоживећи потомци се групишу у кластере малих димензија пречника 0,5 nm и често се припајају молекулима воде или другим молекулима у ваздуху до димензија од

0,5-5 nm. Неприпојени радонови потомци се, у зависности од концентрације јона у ваздуху и влажности ваздуха, делимично неутрализују кроз рекомбинацију са негативним јонима или се припајају честицама аеросола формирајући припојене радонове потомке (пречника од 20 до 500 nm). Њиховом дифузијом кроз ваздух и сталним међусобним сударањем долази до њиховог спајања и распадања или таложења на околне површине, зидове и под затворених просторија.

3.2. РАДОН У ВАЗДУХУ И У ВОДИ

Највећи удео у изложености природној радиоактивности потиче од ²²²Rn, радиоактивног гаса који настаје распадом ²²⁶Ra садржаног у стенама и земљишту као елементу уранијумовог низа (*Jowzaee*, 2013). Радон је присутан на читавој Земљи, али посебно у ваздуху изнад површине земље и у грађевинама.

Главни извор радона у домаћинствима је 226 Ra присутан у земљишту, грађевинском материјалу и води из чесме (*Todorović et al, 2014*). Због особине да лако дифундује из грађевинског материјала и земљишта на којем је саграђен објекат, може представљати опасност по здравље људи. На концентрацију радона у затвореним просторијама, до другог спрата доминантан утицај има хемијски састав земљишта, физичке и водно-механичке особине, док је на вишим спратовима израженији утицај грађевинског материјала. Као битни фактори могу се још издвојити и квалитет градње, тип конструкције, вентилација, али и временски услови и сезонске промене (током зиме и јесени је концентрација радона у затвореном простору већа), стога се највећа пажња посвећује мерењима радона у ваздуху унутар просторија (*Nikolov et al, 2012; L'Annunziata M., 2012; Žunić et al, 2006*).

Подземне стене садрже уранијум чијим распадом настаје радон који лако дифундује у подземне воде. Радон знатно брже напушта површинске воде и услед тога подземне воде садрже потенцијално више концентрације радона него површинске воде. Концентрација активности радона у површинским водама је у просеку нижа од 4 Bq·1⁻¹ (*L'Annunziata M., 2012*). Просечна концентрација активности радона је обично нижа од 0,4 Bq·1⁻¹ у води која се користи за пиће, док је за подземне воде она око 20 Bq·1⁻¹ (*(WHO), World Health Organization, 2008*). Ипак, у неким бунарима је пронађена концентрација активности која је и до 400 пута већа, а у ретким случајевима достиже и 10 kBq·1⁻¹ (*(WHO), World Health Organization, 2008*).

На изворе и дистрибуцију радона у највећој мери утичу геолошке карактеристике. Отпуштање радона из стена и земљишта доминантно зависи од врсте минерала у којима су присутни радијум и уранијум (*Appleton J.D, 2005*). Коефицијенти еманације радона неких минерала су: 0,29-4,17% за монацит;0,46-1,04% за циркон; 0,3-0,76% за уранит; 1,34-22,5 за торит; 16,8-22,9% за церит (*Todorović et al, 2015*). Радон је обично присутан у повишеним

концентрацијама у подземним водама које су у контакту са гранитним стенама, гнајсом, шкриљцима, глинцима, па често и пескарама, кречњаком или лапорцима. Иако је 222 Rn потомак 226 Ra и 238 U, узорци термалних и минералних вода у Србији који су анализирани често показују високе садржаје 222 Rn, али не и високе концентрације 226 Ra и 238 U, те није успостављена корелација између њихових концентрација (*Nikolov et al, 2014*).

Приликом процењивања дозе која потиче од ингестије радона битно је размотрити и технолошке процесе воде који могу довести до уклањања радона. Штавише, употреба подземних вода, које садрже радон, у домаћинству повећава ниво *indoor* радона, самим тим повећавајући дозу која потиче од *indoor* инхалације радона. Ова доза зависи од форме домаћинства и конструкције објекта, јер највећи део *indoor* радона стиже преко темеља куће који је у контакту са земљиштем и то знатније него у контакту са водом. Употреба воде у домаћинству и конструкција кућа знатно варирају широм света.

Ефективна доза примљена при ингестији радона и његових потомака односи се на желудачно ткиво и одређује се на годишњем нивоу (Somlai et al, 2007):

$$E = K \cdot C \cdot KM \cdot t, \qquad 3.1$$

где су

• Е – ефективна доза на годишњем нивоу у [Sv];

• K – конверзиони фактор примљене озе при ингестији 222 Rn, а износи 10^{-8} Sv·Bq⁻¹ за одрасле, а $2 \cdot 10^{-8}$ Sv·Bq⁻¹ за децу (UNSCEAR, 2010);

- С измерена концентрација активности радона у води [Bq·l⁻¹];
- KM просечан унос воде (21 по дану);
- t време за које се процењује доза (1 година, тј. 365 дана).

UNSCEAR (2000) је према US NAS (1999) извештају поставио просечну дозу радона у пијаћој води на 0,025 mSv/години путем инхалације и 0,002 mSv/години путем ингестије у поређењу са инхалационом дозом од 1,1 mSv/години радона и његових потомака у ваздуху ((WHO), World Health Organization, 2008).

3.3. ЗДРАВСТВЕНИ РИЗИЦИ

У последње време је велики број студија *indoor* радона и ризика добијања рака плућа постао доступан. У Европи је спроведено 13 студија *indoor* радона које су као резултат дале процену да ризик расте 16% по 100 Вq·m⁻³ (*Darby et al, 2005*). Базирајући се на овим подацима, радон изазива око 9% смрти услед канцера плућа и 2% смрти од укупног броја канцера у Европи. Слични резултати су објављени и у заједничким истраживањима у Северној Америци (*Krewski et. al, 2005*).

У Сједињеним Америчким Државама US EPA је проценила да је радон узрок око 21 000 канцера плућа годишње (са несигурношћу у опсегу од 8 000-45 000), од око 160 000 годишњих смрти услед рака плућа (*US Environmental Protection Agency, 1999*). Радон је други водећи узрок канцера плућа после цигарета.

US NAS (1999) је објавила да је ризик од излагања радону у пијаћој води око 100 пута мањи (183 смрти годишње). Додатно на 19 000 смрти од рака плућа узрокованих *indoor* радоном у ваздуху, долази 160 као резултат инхалације радона емитованог из воде која се користи у домаћинству. За поређење, око 700 смрти од рака плућа годишње је узроковано излагањем природном нивоу радона у околини.

US NAS (1999) је такође објавила да је ризик од рака стомака узрокованог пијаћом водом која садржи радон екстремно мала, са вероватноћом од око 20 смрти годишње у поређењу са 13 000 смрти од рака стомака који потичу од других узрока у САД ((WHO), World Health Organization, 2008).

3.4. МЕТОДЕ УКЛАЊАЊА РАДОНА ИЗ ВОДЕ

Додатне контроле је потребно укључити уколико је концентрација радона у пијаћој води изнад 100 Bq·1⁻¹. Ово је референтни ниво изнад кога треба обратити посебну пажњу и спроводити контролу. Свака нова, пијаћа вода која се узима из подземних вода, а користи се у свакодневној употеби, мора прво бити тестирана. Уколико је концентрација радона преко 100 Bq·1⁻¹, неопходни су третмани воде који снижавају ниво радона испод 100 Bq·1⁻¹. Одговарајући третмани укључују *air stripping*, систем за проветравање или за мале изворе воде активну карбонску апсорпцију. Уколико постоји значајна количина минерала који производе радон у околини извора воде, потребно је тестирати веће количине пијаће воде на концентрацију радона периодично, на пример, сваких пет година.

Радон се релативно лако уклања *air stripping*-ом. Ефикасност уклањања од преко 99% су постигнуте методама *diffuse bubble* и *packed tower aeration* при односу ваздух:вода 15:1 и 5:1, респективно.

GAC (*Granular Activated Carbon*) је такође ефикасан у уклањању радона из воде, са ефикасношћу од 70 до 100%. Количина радона која је уклоњена активним угљем има неограничену ефикасност, јер се апсорбован радон распада на друге радиоизотопе попут ²¹⁰Pb. Са распадом радона његови потомци емитују гама зрачење са вероватноћом стварања одређених проблема. Процењене брзине дозе које потичу од гама зрачења (до 120 μ Sv/h) су измерене у близини филтера. Посматрања GAC филтера су такође неопходна (*(WHO), World Health Organization, 2008*).

И ЕКСПЕРИМЕНТАЛНИ ДЕО РАДА

4. МЕРНЕ ТЕХНИКЕ

Постоји више техника и метода које се користе за одређивање активности радона у води, али су у овом раду изабране три технике: алфа спектрометрија, гама спектрометрија и техника мерења на течном сцинтилационом детектору. Свака техника је посебно издвојена и описана, а потом су представљени добијени резултати уз пратећу дискусију резултата.

4.1. АЛФА СПЕКТРОМЕТРИЈСКА МЕТОДА

Алфа спектрометрија је метода која се заснива на детекцији алфа честица, односно одређивању њихове енергије. Алфа честице су огољена језгра хелијума, дакле, састоје се од два протона и два неутрона. Најчешћа два механизма путем којих алфа честица интерагује са материјом су ексцитација и јонизација. С обзиром да је маса алфа честица много већа од масе електрона (m_{α} =6,64 \cdot 10⁻²⁷ kg, m_{α} =9,31 \cdot 10⁻³¹ kg), на свом путу алфа честица преда енергију великом броју електрона, те алфа честица има велику јонизациону моћ. Максимум јонизационе моћи алфа честице је на крају путање (Слика 4.1) (*Krmar, 2013*).



Слика 4.1. Брагова крива, максимум јонизационе моћи алфа честице је на крају путање.

4.1.1. ДЕТЕКТОР **RAD7**

RAD7 детектор је уређај произвођача DURRIDGE COMPANY Inc.који се показао као изузетно практичан инструмент за мерење концентрације радона у узорцима воде, посебно због једноставности употребе. Основа уређаја је полупроводнички материјал (силицијум) у којем се енергија упадног α-зрачења директно конвертује у електрични сигнал и на тај начин се раздвајају енергије сваке емитоване α-честице. RAD7 има способност да одреди од ког изотопа потиче емитована α-честица, да раздвоји "стари" од "новог" радона, радон од торона и сигнал од шума. Веома је користан уколико су потребна брза мерења, јер узима у обзир пик краткоживећег потомка (²¹⁸Po, $T_{1/2}$ =3 min), а игнорише потомке са релативно дугим периодом полураспада који остају од претходних мерења (²¹⁴Po, $T_{1/2}$ =27 min). Уређај се састоји од полусфере запремине 0,7 1 изнутра обложеној електричним проводником, а у центру полусфере се налази јонски имплантиран раван силицијумски α-детектор. Унутар запремине ћелије се високим напоном (2000-2500 V) ствара електрично поље између унутрашњег проводника и детектора, које усмерава позитивно наелектрисане честице ка површини детектора (*Stojković I, 2015*).

Шематски приказ уређаја је дат на Слици 4.2. Систем упумпава ваздух у воду како би радон био истиснут и преведен у комору за мерење. У затвореном кружном систему су запремина ваздуха и воде константни и независни од брзине протока. Циркулација ваздуха кроз воду се одвија у циклусима и континуално се екстрахује радон из воде. Када се језгра радона која се налазе у ваздуху унутар мерне коморе распадну на ²¹⁸Ро, електрично поље их убрзава ка детектору на чијој се површини налазе. ²¹⁸Ро емитује α -честице које са вероватноћом од 50% улазе у активну запремину детектора и производе електрични сигнал чији је интензитет пропорционалан њиховој енергији. ²¹⁸Ро се распада и путем β-распада и α -распадом са другом енергијом α -честица, али се то зрачење не детектује, као ни α -честице енергије 5,49 MeV настале распадом радона, јер настају у ваздуху, а не на површини детектора. Сам атом радона је племенити гас, односно, хемијски инертан, електрично неутралан и не усмерава се на површину детектора.

Према упутству произвођача, доња граница детекције која се може постићи је нижа од $0,37 \text{ Bq} \cdot l^{-1}$. Опрема је преносива, ради на батерије и мерења су релативно брза. Уколико се користи унапред дефинисан и од стране произвођача препоручен протокол мерења, након 20 min добијају се резултати (4 циклуса по 5 минута). Бројни фактори утичу на тачност мерења, од којих највећи утицај има сам процес узорковања, а поред тога и концентрација узорка, величина узорка, време мерења, температура и релативна влажност. Фактори који утиче на прецизност мерења су пре свега, узорковање, величина узорка, активност узорка, влажност, температура, време мерења.



Слика 4.2. Шематски приказ RAD7 (RAD7 RAD H2O).

При узимању узорка потребно је обратити пажњу да узорак што мање долази у контакт са ваздухом и да у бочици не остану мехурићи ваздуха, управо због већ поменуте особине радона да лако дифундује. Такође, препоручено је да се узорци за које се очекује висока концентрација узимају у стакленим виалама запремине 40 ml, а узорци за које се очекује ниска концентрација у виалама запремине 250 ml. Уколико се концентрација активности не може проценити, препоручује се узимање узорака у стаклене бочице и једне и друге запремине. Узорци више концентрације активности се генерално могу одредити са већом прецизношћу, јер дају већи одброј у односу на позадинске вредности, али превисоке вредности могу премашити горњу границу опсега које мери уређај. Такође, већа запремина узорка даје већи одброј у јединици времена у односу на позадински одброј у јединици времена, али она повећава утицај температуре.

Дуже време мерења повећава прецизност акумулирајући већи број одброја у јединици времена у односу на позадински одброј у јединици времена, те се на тај начин добија боља статистика. Промена уобичајеног протокола са 20 минута на 80 минута (4 пута по 5 минута) побољшава статистику за фактор 2. Ипак, да би се то извело, потребно је да уређај буде темељно продуван, да се влажност не би повисила током свих 80 минута мерења. Управо из тог разлога је савет произвођача да се користи 20–минутно мерење, да би влажност у самом уређају током мерења воде остала довољно ниска. RAD7-H2O је калибрисан на температуру од 20°C. На нижим температурама, вода "задржава" мало радона, док на вишим температурама "даје" нешто више радона (*RAD7 RAD H2O*).

4.1.2. ОПИС МЕТОДЕ

Мерења радона у води се спроводе користећи наставке за мерење (Слика 4.3). У циљу одређивања минималне детектабилне активности, узорак дестиловане воде је сипан у стаклену бочицу за мерење и остављен да стоји четири недеље, како би сав радон дифундовао. Према произвођачу, могуће је достићи ниску активност *blank* узорка (узорак који сигурно не садржи радон) уколико су пре мерења у потпуности елиминисан радон и сви његови потомци.



Слика 4.3. RAD7 са наставцима за мерење радона у води

Пре мерења неопходно је обезбедити да нема радона у RAD7 детектору и смањити влагу у уређају. То се постиже продувавањем одговарајућим одвлаживачем ваздуха у трајању од око 10 минута. Релативна влажност у уређају мора бити испод 6%, што осигурава да ће остати испод 10% током читавог мерења. Уколико није, потребно је наставити продувавање док се не постигне задовољавајућа влажност ваздуха. Протокол RAD7-H₂O захтева коришћење одвлаживача током мерења, како би ваздух који улази у уређај био сув. Мерна бочица, у коју се сипа узорак воде, се цевчицом повезује са уређајем. Ваздух циркулише кроз воду (Слика 4.4) и извлачи радон док се не постигне стање равнотеже. Систем постиже равнотежу за око 5 минута, након чега се нови радон не извлачи из воде.


Слика 4.4. Процес извлачења радона из воде

Пумпа уређаја ради аутоматски током 5 минута, дистрибуирајући радон који се налази у води. Проценат радона који је извучен из воде је за узорке у бочици од 40 ml 99%, а 94% за узорак од 250 ml. Тај проценат зависи и од температуре, али је готово увек сигурно да ће ефикасност бити изнад 90 %, те се утицај температуре може занемарити. RAD7 чека још 5 минута док брзина бројања ²¹⁸Ро не достигне равнотежу и потом мери у 4 циклуса по 5 минута. Концентрација активности радона у води се рачуна директно и приказује се на монитору инструмента, уређај штампа исечак на коме пише средња вредност концентрације активности, стандардна девијација, време почетка мерења и који протокол је коришћен.

Као што је већ напоменуто, најбољи начин да се одреди позадинска активност је да се мери *blank* узорак, узорак воде који не садржи радон. Такав узорак може бити дестилована вода или узорак воде који је стојао око 4 недеље, тако да је омогућено да сав радон дифундује.

Након мерења узорака високе концентрације активности, потребно је продувати систем, али и тад је могуће да су потомци радона остали у уређају. ²¹⁸Ро има време полураспада 3 минута. У периоду од 30 минута, колико је потребно продувавати, близу хиљаду распада ²¹⁸Ро се одигра. Поред осетљивости на ²¹⁸Ро, уређај је осетљив и на ²¹⁴Ро, који може допринети укупном одброју и након неколико сати после мерења радона. RAD7 поседује дискриминатор који на основу енергије алфа честице не прихвата оне које потичу од распада ²¹⁴Ро, али ипак одређени проценат успева да прође дискриминатор и допринесе укупном одброју. Решење је сачекати да активност опадне и проверавати је *blank* узорком (*RAD7 RAD H2O*).

33

4.2. АЛФА СПЕКТРОМЕТРИЈА ТЕЧНИМ СЦИНТИЛАЦИОНИМ МЕТОДОМ

Сцинтилације су појаве емисије видљивог зрачења приликом интеракције сцинтилационих материјала са јонизујућим зрачењем. Када јонизујуће зрачење интерагује са материјалом, долази до преласка електрона на више енергијске нивое, тј. до ексцитације електрона. У побуђеним стањима електрони остају коначан интервал времена и приликом преласка на ниже нивое вишка енергије се ослобађају у виду фотона. Таласна дужина емитоване светлости зависи од разлике енергија између нивоа према релацији:

$$E = h \cdot \nu = \frac{h \cdot c}{\lambda} \tag{4.1}$$

где је:

- Е енергијска разлика два нивоа
- ν фреквенција емитованог фотона,
- *λ* таласна дужина емитованог фотона,
- c -брзина светлости у вакууму $(3 \cdot 10^8 \frac{m}{s}),$
- $h \Pi$ ланкова константа (6,626 · 10⁻³⁴ $J \cdot s$).

LSC (*Liquid Scintilacion Counter*) метод је метод који се заснива на појави сцинтилација у материјалу који се испитује, односно на одређивању енергија емитованог зрачења. Доминантно се користи за одређивање α - и β -активности узорака, али се употребљава и за анализу радионуклида који емитују γ -зраке, х-зраке, неутроне, *Auger*-ове и конверзионе електроне. У ту сврху користе се течни сцинтилациони детектори који се састоје од сцинтилатора, фотомултипликатора и електронског уређаја за појачавање и обраду импулса.

4.2.1. СЦИНТИЛАЦИОНИ ДЕТЕКТОРИ

Сцинтилациони детектори су детектори који за детекцију зрачења користе појаву луминесценције, тј. особину материјала да емитује светлост када му атоми бивају побуђени или јонизовани. Основни проблем идеје детекције зрачења која би се базирала на процесу луминесценције је чињеница да је већина материјала непрозирна за сопствену светлост. Материјали који су прозирни за сопствену светлост се могу поделити на органске и неорганске сцинтилаторе.

Органски сцинтилатори се појављују у кристалној форми (нафталин, антрацен, стилбен), али се могу користити и у течној форми (ксилен, толуен). И кристални и течни сцинтилатори су угљоводонична једињења. Код молекула ових једињења свако електронско стање има велики број вибрационих и ротационих стања. Када један овакав молекул буде побуђен на више електронско стање, део енергије се утроши на прелазе између вибрационих нивоа тог побуђеног електронског стања. Енергија фотона који се емитује приликом преласка молекула на основно електронско енергијско стање може у том случају да буде мања од енергије којом је молекул побуђен. Услед тога, емитована светлост има већу таласну дужину од светлости која је довела до луминесценције, односно светлости која је апсорбована. Због тога емитована светлост неће бити апсорбована у самом материјалу и излази из њега носећи информацију о интеракцији која се одиграла.

Неоргански сцинтилатори се користе у форми монокристала и најчешћи од њих је NaI, али се употребљавају и LiI, CsI, CsF и KI. Ови кристали су прозирни за светлост коју емитују у малом проценту (око 0,1 %), те да би се тај проценат повећао, додаје им се мала количина примеса, такозвани активатори, који стварају луминесцентне центре. Код већине наведених материјала употребљава се Tl. Зрачење које пролази кроз кристал ствара електроне и шупљине који се померају дуж кристалне решетке. Шупљине могу бити попуњене електронима из луминесцентног центра, чиме он бива побуђен. Преласком из побуђеног у основно стање он емитује светлост. Емитована светлост није исте таласне дужине као и она која одговара енергији побуде кристалне решетке и не бива апсорбована унутар материјала. Чист кристал NaI емитује и апсорбује светлост чији је максимум интензитета на 303 nm, док је максимум интензитета светлости коју емитује кристал NaI (Tl) на 410 nm.

Органски сцинтилатори могу бити растворени у чврстој, прозирној пластици (терфенил у полистирену) и на тај начин се добијају пластични сцинтилатори. Уколико се растворе у органским течностима, добијају се течни сцинтилатори.

Неоргански материјали дају већу количину светлости на излазу, али споро реагују, док органски материјали дају мању количину светлости на излазу, али брже реагују. Течни и пластични сцинтилатори имају веома добру временску резолуцију и из тог разлога су

35

ненадмашни за мерење великог броја догађаја и брзих сукцесивних догађаја. Органски сцинтилатори, као и пластике и течни растварачи са којима се мешају, имају мали ефективни редни број, тако да се већина интеракција одвија путем Комптоновог ефекта. Енергија фотона се не може установити са тачношћу као код неорганских сцинтилатора и из тог разлога се органски сцинтилатори ређе користе за гама спектроскопију, али су веома погодни за спектроскопију алфа и бета честица.

У LSC техници користе се сцинтилациони коктели (*LSC mечности*) који се стављају у бочице-виале за мерење. Емисија зрачења из активног узорка ексцитује молекуле, који потом генеришу светлост. LSC коктел је органски растварач који садржи мале количине адитива– флуора, који побољшавају саме перформансе детекције. Зрачење које емитује узорак предаје своју енергију молекулима растварача, а они потом своју енергију предају флуору. Побуђени молекули флуора прелазе у основно стање и емитују фотоне.

За LSC коктеле користе се ароматични растварачи јер имају велику густину електрона. У интеракцији са бета честицама производе велику количину флуоресценција. Међу растварачима најчешће се користе:

- ксилен
- толуен
- бензен
- фенилциклохексан
- триетилбензен
- декалин

Међу нерастварачима најчешће су у употреби:

- р-терфенил (C₁₈H₁₄)
- PBD (2-фенил 1,5-(4-бифенилин)-1,3,4-оксадиазол (С₂₀H₁₄N₂₀))
- PPO (2,5- дифенилоксазол (C₁₅H₁₁NO))
- РОРОР (1,4- бис- (2-(5-фенилоксазолил)-бензен (С₂₄H₁₆N₂O2))

Мерења су показала да се ефикасност течних сцинтилатора повећава са концентрацијом растворене супстанце. Типичне концентрације су 3g супстанце растворене по једном литру растварача.

Одзив органских течних сцинтилатора је кратак, од 3 до 4 ns. Да би се повећала ефикасност, могу им се додати други материјали, а такође се могу додати и померачи таласних дужина, како би сцинтилатор био више у складу са фотодетектором на који је спојен. Мешање материјала углавном смањује светлосни одзив, због ефекта слабљења који производе ови материјали. Течни сцинтилатори су веома осетљиви на нечистоће у растварачу, те су услед њихових постојања јављају ефекти пригушења (quench). Quench смањује реалну количину зрачења коју би раствор емитовао, што утиче на добијање резултата мањих од реалних вредности. Пре сваког мерења се ради стандардни тест (Standard Quenching Parametar-SQP) на присуство материја које би могле да проузрокују пригушење. Уколико је SQP негативан, узорак је спреман за мерење (Лабораторија за испитивање радиоактивности узорака и дозе јонизујућег и нејонизујућег зрачења, 2012).

4.2.2. ФОТОМУЛТИПЛИКАТОРИ

Светлост коју емитује сцинтилатор се мери осетљивим фотомултипликаторима (РМТ) (Слика 4.5). Улазни део фотомултипликатора је катода на којој долази до фотоефекта при чему се избија електрон. Након катоде налазе се серијски везане диноде, тако да се свака наредна динода налази на вишем потенцијалу од претходне. Расподела потенцијала у правцу катода-анода је реализована помоћу унапред подешеног разделника напона. Убрзавањем електрона избијених са катоде, све већи број електрона бива емитован са динода, да би се електрони скупљали на аноди и стварали излазни импулс. Интензитет излазног сигнала је директно пропорционалан енергији упадног зрачења.

С обзиром да РМТ нису осетљиве на енергије, тј. таласне дужине светлости ароматичних растварача додају се мале количине флуора. Фотони емитоване светлости се сакупљају помоћу система оптичких рефлектора на фотокатоде РМТ и мултиплицирају се. РМТ су повезани са електронским појачивачима и другим електронским уређајима. Електрични сигнал који се добија је пропорционалан оригиналној енергији честице.



Слика 4.5. Шематски приказ течног сцинтилационог детектора са РМ (фотомултипликаторским цевима) и назначеним релевантним деловима система.

4.2.3. СЦИНТИЛАЦИОНИ ПРОЦЕСИ У КОКТЕЛИМА

Радиоактивни узорак се налази у виалу заједно са сцинтилационим коктелом који се састоји од растварача (S) и сцинтилатора који емитује флуоресцентну светлост (F). С обзиром да су молекули растварача заступљени у већој концентрацији од растворених молекула F у коктелу, јонизујуће зрачење ће у узастопним интеракцијама са сцинтилаторским материјалом углавном да јонизује или ексцитује ароматичне молекуле растварача ($S \rightarrow S^+ + e^-$ или $S \rightarrow$ S^*). Јонизовани молекули растварача заробе слободни електрон и конвертују се до неутралних молекула ($S^+ + e^- \rightarrow S^*$). Неутрални молекули врше трансфер дела енергије ексцитације другим молекулима растварача или молекулима сцинтилатора нерадијативним преносима. Ексцитовани молекули флуора се деексцитују у емисијама UV или видљиве (плаве) светлости таласних дужина 375-430 nm ($F^* \rightarrow F + h\nu$) за које су сцинтилациони коктел и зид виала транспарентни. Фотони који су настали падају на катоду, избијају електроне који потом стижу на фотомултипликаторску цев. Дужина светлосног сигнала траје 5 ns. По сваком keV депоноване енергије од стране β^2 честице у коктелу генерише се око 12,5 фотона. Интензитет светлости коју емитује молекул раствореног сцинтилатора из коктела је пропорционалан енергији радиоактивног распада, а број импулса по јединици времена је пропорционалан броју распада по јединици времена (радиоактивности узорка) (Stojković I, 2015).

4.2.4. ПРОЦЕСИ КОЈИ ОМЕТАЈУ LSC ДЕТЕКЦИЈУ

• Позадинско зрачење или background представља одброје у детектору који потичу од спољашњих извора-космичког зрачења и зрачења из окружења, као и од самог инструмента и фотомултипликаторских цеви. Приликом сваког мерења треба узети у обзир да постоји background и од измереног одброја одузети одброј background-а. Одброј background-а се добија мерењем blank узорка, тј. узорка који не садржи радионуклид који се испитује, а састоји се од виала са сцинтилационим коктелом.

• Пригушење у сцинтилационим бројачима јавља се услед апсорпције емитованих фотона из сцинтилатора од стране растворених минерала из природних вода, што редукује ефикасност детекције (*Pujol Ll., Sanchez–Cabeza J.A., 2000*). Пригушење представља губитак енергије у току њеног преноса, а може бити јонизационо, хемијско и обојено пригушење. Јонизационо пригушење се односи на редукцију броја густо побуђених молекула сцинтилационог коктела услед њихове интеракције. Код хемијског пригушења се у току трансфера од растварача до раствореног сцинтилатора дешава делимична апсорпција енергије од стране молекула сцинтилатора пре конверзије у фотоне, јер електронегативни атоми везују π електроне из ароматичних раствора и тиме редукују доступне π електроне за ефикасан трансфер енергије. Обојено пригушење је атенуација фотона у процесима апсорпције или расејања фотона пре њихове детекције, што даје редукован излазни светлосни сигнал.

• Уколико у узорку постоји *више радионуклида*, може да се деси да ће се спектри појединачних радионуклида преклопити.

• *Луминесценција* у течним сцинтилационим коктелима представља емисију фотона која прати ексцитацију молекула након апсорпције енергије која не потиче од нуклеарног зрачења. Биолуминесценција је емисија фотона (енергије од 0-10 keV) као последица биохемијских реакција. Фотолуминесценција је последица излагања смеше узорак + сцинтилациони коктел UV зрачењу, при чему се емитује усамљени фотон, а траје неколико минута. Хемилуминесценција је емисија фотона која настаје непосредно након припреме узорка као резултат хемијских реакција. Наиме, додавањем сцинтилационог коктела раствору узорка настају ексцитовани молекули због промене pH-вредности и због хемијских интеракција међу компонентама.

• Статички ефекат настаје трењем или притиском између два материјала, па када се непроводни материјали раздвоје, један део остаје позитивно, а други негативно наелектрисан. Интензитет статичког електрицитета се мери као позитиван или негативан напон на површини материјала реда величине неколико десетина хиљада волти. Пражњење статичког електрицитета је случајан догађај; може се десити приликом припреме узорке у виалима,

39

поготово у условима ниске влажности у лабораторијама које се загревају сувим ваздухом. Манифестује се као електрична светлосна олуја у или на површини виала, због чега се детектују насумични импулси.

• Ефекат зидова се јавља приликом мерења узорака у пластичним виалима са класичним коктелима (на бази растварача ксилена, толуена или псеудокумена) јер органски сцинтилатори могу пробити зид пластичне бочице. Овај проблем је превазиђен употребом еколошки безбедних коктела у комбинацији било са пластичним или стакленим виалима или употребом класичних коктела, али у стакленим виалима (*Stojković I, 2015*).

4.2.5. LSC ДЕТЕКТОР QUANTULUS 1220[™]

Quantulus 1220^{TM} (Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer Wallac 1220^{TM} Quantulus) је течни сцинтилациони детектор произвођача PerkinElmer који се показао као изузетан уређај за мерење ниских концентрација активности вештачких, космогених и других природних радионуклида. Димензије уређаја су $101 \times 156 \times 92$ ст (Слика 4.6).



Слика 4.6. Quantulus 1220^{TM}

Његове основне предности у односу на друге типове детектора су:

• висока стабилност, чак и у случају дугог времена мерења;

 напредно раздвајање α- и β- спектара, захваљујући класификацији независних амплитуда импулса на основу њиховог облика;

• пасивна атенуација зрачења из околине (оловна заштита са довољно ниском радиоактивношћу) и активна заштита од космичког зрачења и зрачења из средине, која спречава губитке у ефикасности детекције.

Заштита коју поседује уређај је добра, те је позадинско зрачење у великој мери елиминисано и практично не утиче на активности узорка. Око коморе са виалима Quantulus има уграђен систем background редукције, који се састоји од пасивне и акттивне заштите (Слика 4.7). Пасивну заштиту чини масивна асиметрична оловна заштита, ниске радиоактивности, која атенуира већи део γ-зрачења из околине и меку мионску компоненту космичког зрачења, и слој бакра који апсорбује х-зрачење и термалне неутроне који настају у олову интеракцијом космичких зрака. Директно изнад коморе за мерење је најдебљи слој заштите, дебљине око 20 сm, док је са доње стране коморе дебљина нешто мања, 15 cm, јер значајан део зрачења атенуира земља. Бочне стране коморе су заштићене од γ-зрачења из окружења детектора слојем олова дебљине 7-11 cm.

Активна заштита од детекције коинцидентних догађаја је заснована на сцинтилаторима на бази минералног уља. Активну зашититу чини асиметрични штит са течним сцинтилатором, односно цилиндар у чијој цеви је постављен бета детектор. Ова цев је ван осе, па је дебљина сцинтилатора највећа изнад коморе за мерење и фотомултипликаторских цеви. Активни елемент у заштити је сцинтилатор на бази минералног уља, чије сцинтилације региструју два додатна РМТ-а.



Слика 4.7. Шема детекторске коморе са активном и пасивном заштитом Quantulusa 1220TM

У детектор стаје 60 узорака у три реда (по 20 у сваком). Флексибилно руковање узорцима је успостављено помоћу три, програмски контролисана, 4×5 низа за узорке. Могу се користити виали запремине од 3 ml до 20 ml, али и виали мањих запремина уз коришћење адаптера. Узорци се мере у циклусима по неколико пута, уз слободу избора протокола и редоследа мерења, а на крају мерења се рачуна просечна вредност резултата. Могуће је задати време мерења индивидуално за сваки узорак.

У Quantulus-у се налазе два дуално програмибилна вишеканална анализатора (MCA, *MultiChannel Analyzer*), од којих један служи као активна заштита, а други бележи спектре.

Корекције на *quench* се врше коришћењем стандарда 152 Еи ниске активности (37 kBq). Уређај је калибрисан на температуре од 15°C до 35°C, а релативна влажност може да буде до 75%. Могућ је рад под екстремним или променљивим условима, с обзиром да се унутрашњост инструмента одржава на константној температури у оквиру 12°C разлике у односу на температуру околине. Хлађење помоћу 4 електронски бешумна Пелтијеова елемента се може побољшати увођењем циркулације воде (*Stojković I, 2015*).

4.2.6. ОПИС МЕТОДЕ

Метода за анализу садржаја радона у пијаћим, површинским и подземним водама препоручена је од стране US Environmental Protection Agency (*EPA Method 913.0, 1991*). У њој се подразумева припрема двофазних узорака.

Узимање узорака је генерално највећи узрок грешака при мерењу радона у води. Узорак воде мора бити репрезентативан за воду која се тестира и као такав не сме доћи у додир са ваздухом. За мерење радона у води за пиће LSC методом коришћен је EPA Method 913.0 (*EPA Method 913.0, 1991*).

Према EPA Method 913.0 за калибрацију и стандардизацију је коришћен Radium Solution Method, где је припремљен стандард од 100 ml²²⁶Ra у води тако да је коначна активност апроксимативних 1.3 kBql⁻¹. Стандардни радиоктивни извор произведен у Czech Metrology Institute, Inspectorate for Ioniving Radioation, је коришћен за инструменталну калибрацију, за сертификованом активношћу A (226 Ra) = 37,472 Bq·ml⁻¹ са несигурношћу од 0,5%, референтног датума 1/10/2013. 10 ml разређеног стандарда је пресуто у 20 ml сцинтилациони виал у коју се додаје и 10 ml сцинтилационог коктела. *Backgorund* узорци су припремљени са 10 ml дестиловане воде. Стандардни и Backgorund узорци су остављени да стоје 30 дана како би радон достигао секуларну равнотежу. Радон дифундује из узорка у сцинтилациони коктел према којем има много већи афинитет него према води. Стандарди се мере 50 минута на течном сцинтилационом детектору Quantulus 1220 (Todorović et al, 2014). За одређивање садржаја радона у води за пиће, 10 ml узорка воде се пипетира у стакленим сцинтилационим виалима у које се додаје 10 ml сцинтилационог коктела. Узорци се промућкају и оставе на тамно место најмање три сата да би се остварила равнотежа потомака радона. Експерименти објављени у раду (Kitto, 1994) показали су да код припреме двофазних узорака иницијално мућкање узорака одмах након мешања са коктелом подстиче трансфер радона у органску фазу и достизање равнотежног стања у виалу (стање хемијске и радиоактивне равнотеже се постиже у року од 5 h), и да је време мућкања (3-40 s) обрнуто пропорционално времену достизања равнотеже. док се у узорцима који нису уопште били мућкани равнотежа достизала након 25 h. У истом раду је закључено да свако наредно мућкање узорака ремети равнотежу јер се радон и његови потомци враћају у водену фазу, а равнотежа се успоставља поново након 2 h. Међутим, новији радови су утврдили да мућкање виала након додавања коктела узорку не убрзава дифузију радона у органску фазу коктела мешљивог са водом (*Gomez Escobar et al, 1996*).

Првобитна оптимизација методе је урађена са сцинтилационом коктелом *OptiPhase HiSafe 3*, који је монофазни коктел. Обезбеђује одличну α/β сепарацију и добро се меша са водом и воденим растворима, а виали у којима је радијумов стандард био помешан са OptiPhase HiSafe су транспарентни и хомогени. Изабрани су стаклени виали запремине 20 ml са чеповима са тефлонском или алуминијском подлогом, који спречавају еманацију радона. Пластични виали доводе до губитака радона апсорбовањем на полиетиленским површинама. Средњи одброј позадинског зрачења је 0,326 min⁻¹. Коришћена је WinO мерна конфигурација за снимање и дискриминацију α/β спектара (*Todorović et al, 2014*).

Калибрациони фактор, CF, који представља ефикасност детекције 226 Ra, односно 222 Rn¹, рачуна се коришћењем израза *(Todorović et al, 2014):*

$$CF = \frac{S - B}{C \cdot V} \tag{4.2}$$

где су:

- $S[min^{-1}]$ одброј радијумовог стандарда;
- $B[min^{-1}] \text{одброј } background-a;$

• $C [Bq \cdot l^{-1}]$ – концентрација активности калибрационог ²²⁶Ra стандарда у равнотжи са ²²²Rn;

• *V*[*l*] – запремина мерног стандарда.

Концентрација активности и статистичка несигурност бројања су рачунати на следећи начин (Todorović et al, 2014):

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

$$4.3$$

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

$$4.4$$

¹¹ Калибрација може да послужи мерењу оба радионуклида у води, разлика је у времену које протекне између припреме и мерења. Уколико се узорак одмах по узорковању припреми и измери на LSC бројачу, добиће се концентрација активности ²²²Rn; уколико се узорак остави да стоји ~30 дана, ²²²Rn би ушао у равнотежу са ²²⁶Ra и добијена измерена концентрација би заправо била концентрација активности ²²⁶Ra у узорку (Jowzaee, 2013; Gomez Escobar et al, 1996).

где су:

- *G* [*min*⁻¹] укупан одброј узорка;
- $D = \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}}t\right) \phi$ актор корекције на распад ²²²Rn рачунат за време t;
- *t* време протекло од узорковања до средине периода мерења узорка у бројачу;
- *V* [*l*] –запремина узорка;
- $T_B[min]$ време мерења *background*-а;
- $T_G[min]$ време мерења узорка.

Минимална детектабилна активност (MDA) се одређује према изразу (Stojković I, 2015):

$$MDA = \frac{2,71 + 4,65\sqrt{B \cdot T_B}}{CF \cdot D \cdot V \cdot T_B}.$$

$$4.5$$

Мерења су вршена са различитим сцинтилационим коктелима:

• *Ultima Gold AB (UGAB)* – коктел специјално направљен да добро раздваја α- од βспектра, добро се меша са водом и различитим киселинама. Према спецификацији врло је стабилан по питању quench-а.

• *Mineral Oil Scintillator (MOS)* – овај сцинтилациони коктел не садржи емулзифајере и декларисан је да је одговарајући само за органске узорке, јер се не меша са водом и воденим растворима. Наглашено је да је посебно погодан за мерење ²²²Rn у води из разлога што има способност да екстрахује сав радон из воде у коктел.

• Ultima Gold F (UGF) — сцинтилациони коктел који се може користити само за органске узорке јер се не меша са водом, али показује изузетно добру стабилност по питању quench-а.

При том, коришћене су две LSC методе:

• *Монофазна* – у којој долази до потпуног мешања сцинтилационог коктела и узорка воде и не постоји раздвајање фаза (Слика 4.8а).

Првобитна калибрација је управо и урађена са OptiPhase HiSafe3 сцинтилационим коктелом. Поред њега, монофазне узорке даје и сцинтилациони коктел *Ultima Gold AB* (*UGAB*). Међутим, за разлику од узорака припремљених са OPHS3 који су били транспарентни, ови узорци су били замућени.

• *Двофазна* - која подразумева комбинацију сцинтилационог коктела који се не меша са водом, дакле, добијају се две фазе (Слика 4.8б).

Сцинтилациони коктели који дају двофазни узорак су Mineral Oil Scintillator (MOS)) и Ultima Gold F (UGF).





а) б)Слика 4.8. а) Монофазни узорак б) Двофазни узорак

4.3. ГАМА-СПЕКТРОМЕТРИЈСКА МЕТОДА

Гама зрачење је зрачење малих таласних дужина ($<10^{-12}$ m). Између гама и рендгенског зрачења не постоји никаква разлика у погледу интеракције са материјом. У оба случаја реч је о електромагнетном зрачењу мале таласне дужине, а разликују се једино по месту настанка. Гама зрачење потиче из језгра, док рендгенско зрачење настаје у процесима који се одвијају у пољу језгра. Гама зрачење се емитује при гама распаду, односно када језгро прелази из побуђеног стања у стање ниже енергије. За разлику од алфа или бета распада, при гама распаду не долази до промене састава језгра, односно броја нуклеона у језгру, већ се само мења енергијско стање језгра. Због тога се гама распад не сматра распадом у правом смислу те речи, већ трансформацијом језгра. Велики број радионуклида који су алфа или бета емитери, након распада дају језгро потомак у побуђеном енергијском стању, те се велики број распада одвија уз емисију гама фотона (Слика 4.9).



Слика 4.9. Шематски приказ β-- распада ⁶⁰Со. При распаду настаје језгро ⁶⁰Ni у побуђеном стању. У нижа енергијска стања, језгро потомак прелази уз емисију гама кваната од 1332 keV и 1173 keV (са одређеном вероватноћом емисије).

Уколико занемаримо узмак језгра услед гама емисије, енергија емитованог фотона (E_{γ}) је једнака разлици енергија побуђеног (иницијалног) стања (E_i) и финалног стања (E_f) (које може бити опет побуђено стање, али ниже енергије, или основно стање) (Mrđa D, Bikit I, 2016):

$$E_{\gamma} = E_i - E_f \tag{4.6}$$

Енергијска стања језгра су квантована, према томе, прелазима у нижа енергијска стања добије се дискретан спектар. Како су вредности енергија стања карактеристика сваког

појединачног радиоизотопа, спектри гама зрачења су заправо "ДНК" радиоизотопа. Ова особина формулише основу гама спектрометрије: Мерењем енергије гама зрака, могуће је одредити извор радијације. На основу интензитета линија коју емитује тај извор, могуће је одредити и његову активности.

Најчешћи механизми путем којих гама зраци интерагују са материјом су Комптонов ефекат, фотоелектрични ефекат и стварање парова (за фотоне високих енергија) (*Krmar,* 2013). На основу ефеката који произведу у активној запремини детектора, могу се мерити различитим уређајима. Гама спектрометрија је метод који се заснива на одређивању енергије и броја фотона које емитује извор гама зрачења. Коришћењем германијумских детектора високе резолуције, омогућава се прецизно квантитативно одређивање радиоактивног садржаја у било ком типу узорка. У овом раду је за мерење коришћен НРGе детектор, те ће он бити детаљније описан.

4.3.1. ОСОБИНЕ СПЕКТРА ГАМА ЗРАЧЕЊА

Спектри који се добијају распадима калијума, урана и торијума имају своје карактеристичне линије, тј. имају линијски карактер. Спектар на слици 4.10а) је добијен теоријским рачуном расподеле енергије фотона емитованих у извору. Међутим, у реалном случају добија се спектар приказан на слици 4.10б). Услед ефеката попут релативног кретања и Хајзенберговог принципа неодређености, добијене линије нису оштри пикови, а ни фотони не остављају увек целокупну енергију унутар детектора највише због Комптоновог расејања у детектору. Колико фотона ће бити детектовано и са којим енергијама зависи од геометрије извор–детектор и количине атенуационог материјала између извора и детектора.



Слика 4.10. а) Спектар ²³⁸U теоријски предвиђен б) Спектар ²³⁸U експериментално добијен (*IAEA*, 2003).

Најбитнија карактеристика спектра је врх потпуне апсорпције, који настаје када упадни гама фотон остави сву своју енергију у детектору. Количина енергије депонована у детектору ће бити једнака енергији фотона само у следећим случајевима:

• фотоелектрични ефекат;

• један или више случајева Комптоновог расејања праћеног фотоелектричним ефектом;

• производња парова прећена фотоелектричном апсорпцијом оба анихилациона фотона, што се може десити после једног или више Комптонових расејања.

Да би целокупна енергија при фотоелектричном ефекту била депонована унутар детектора, морају бити испуњени следећи услови:

• Х-зраци атома детектора, емитовани унутар електронског омотача након емисије фотоелектрона, морају бити апсорбовани у кристалу.

• Фотоелектрони морају да изгубе сву енергију унутар осетљиве запремине детектора. Губици на закочно зрачење и избегли фотоелектрони доприносе континууму висине импулса од нуле до пуне енергије.

• Ефекти замки и губитака у сакупљању наелектрисања морају бити занемарљиво мали, у супротном, догађај ће доприносити нискоенергијском репу врха пуне енергије.

Фотоелектрични ефекат преовлађује на ниским енергијама, док је Комптоново расејање доминантно на енергијама од 150 keV до 9 MeV. Електрони који се добијају Комптоновим расејањем, чија се енергија депонује у детектору, доприносе континуалној расподели која се налази у интервалу од 0 до енергије одређене релацијом:

$$E_c = \frac{E}{1 + \frac{m_0 c^2}{2E}}$$
 4.7

где је:

- Е енергија примарног фотона;
- *m*₀*c*² енергија мировања електрона.

4.3.2 ФАКТОРИ КОЈИ УТИЧУ НА ОБЛИК СПЕКТРА

Фотони емитовани из извора, поред интеракције са детектором, интерагују и са материјалима који се налазе око кристала детектора. Мереном спектру тада доприносе и секундарни фотони, комптонски расејани и анихилациони кванти.

С обзиром да као резултат фотоелектричног ефекта настаје побуђени атом, при повратку у основно стање, он емитује карактеристичне Х-зраке, који се појављују у спектру (Слика 4.11). Они су последица фотоефекта који се догодио на материјалима у околини кристала, као нпр. заштите детектора, колиматора и других елемената.

Комптонски расејани фотони из материјала који опкољавају детектор имају поменуте енергије (од 0 до енергије одређене релацијом 4.3), у зависности од угла расејања. Фотони који су расејани уназад најчешће преовлађују и производе врх повратног расејања близу доње границе енергијског интервала (Слика 4.11).

Врху на 511 keV доприносе анихилациони кванти, али се јављају у случају фотона високих енергија.



Слика 4.11. Спектар ¹³⁷Cs снимљен сцинтилационим детектором 76×76 mm NaI. На слици се види, уз фотопик који потиче од гама распада ¹³⁷Cs, постојање Комптонове ивице, допринос расејаних фотона и карактеристични X-зраци који потичу од ¹³⁷Ba (потомак ¹³⁷Cs).

4.3.3. НРСЕ ДЕТЕКТОРИ

НРGе детектори су полупроводнички детектори код који је активна средина германијум високог степена чистоће. Први полупроводнички детектори су почели да се производе крајем шездесетих година прошлог века. Детекција зрачења код полупроводничких детектора се заснива на скупљању јона и парова електрон–шупљина који настају у интеракцији гама фотона са активном запремином детектора. Полупроводнички детектори су углавном малих запремина, па се често користе за *in-situ* мерења. С обзиром да им је активна средина полупроводнички материјал, они се морају хладити, што се постиже уметањем криостат у дјуар испуњеног течним азотом или електричним криогенским хладњацима (*IAEA*, 2003).

НРGе детектори р-типа настају додавањем малих концентрација акцепторских нечистоћа (елементи III групе Периодног система елемената) у кристал Ge. Шематски приказ планарног детектора р-типа је приказана на Слици 4.12. Приказана конфигурација је $n^+ - p - p^+$ диодна структура. Знак "+" означава високо допирани материјал. Контакт n⁺ се добија дифузијом донорског елемента (припада V групи Периодног система елемената) са једне стране, а p^+ контакт се добија имплантацијом акцепторског елемента.



Слика 4.12. Шематски приказ планарног НРGе детектора

РN спој је инверзно поларизован, што се остварује довођењем вишег потенцијала на n^+ контакт. Инверзном поларизацијом се формира јако електрично поље унутар беспримесног слоја. Са повећањем напона, зона просторног наелектрисања која се формира око n^+ ивице, се полако шири и уколико је напон довољно велики, цела p област постаје зона просторног наелектрисања. Код планарних НРGе детектора, дебљина слоја просторног наелектрисања, која представља активну запремину детектора, износи 1-2 ст, што је недовољно за детекцију високоенергетских гама зрака, енергије реда MeV. У циљу повећања активне запремине детектора, произведени су коаксијални детектори, отвореног и затвореног краја (Слика 4.13).



Слика 4.13. Типови коаксијалних детектора велике осетљиве запремине. Приказане су две могућности за формирање PN-споја (за детектор р-типа љубичастом бојом је означен

```
n<sup>+</sup>контакт).
```

У случају коаксијалних детектора, PN спој може бити формиран са спољашње или унутрашње стране кристала детектора. Конфигурација са спољашњим PN спојем, захтева мањи напон него конфигурација са PN спојем унутар кристала. Разлог је што се у првом случају област просторног наелектрисања шири ка унутрашњости са повећањем примењеног високог напона, а самим тим и активна запремина осетљива на зрачење, док се у другом случају шири ка спољашњости (*Stanković I, 2014*).

Карактеристика коаксијалних детектора p-типа је да је значајни део снопа упадних фотона енергија мањих од 100 keV ослабљен услед релативно дебелог површинског мртвог слоја који чини спољашњи n⁺ контакт (700 μ m). Због тога се најчешће користе са прозором од Al за деткцију фотона енергија већих од 50 keV. Коаксијални детектори n-типа садрже тањи мртви слој (p⁺ контакт дебљине 0,3 μ m), па уз прозор од Be могу да детектују фотоне и нижих енергија, доо неколико keV (*Stanković I, 2014*).

У случају детекције гама зрачења, германијум има боље особине јер има редни број много већи од редног броја силицијума ($Z_{Si} = 14, Z_{Ge} = 32$), због чега је ефикасни пресек за фотоелектрични ефекат око 60 пута већи у случају Ge, него у случају Si (*Leo W, 1994*).

Гама спектрометријска мерења су вршена коришћењем германијумског полупроводничког детектора високе резолуције – НРGе детектор произвођача *CANBERRA*, модел CG3518 (Слика 4.14). Кристал германијума је спољашњег дијаметра 61 mm, висине 52 mm и смештен је у кућиште од Al дебљине 1,5 mm. Спољашњи n⁺ контакт је дебљине 0,65 mm, а унутрашњи p⁺ контакт је танак слој Al. Унутар кристала се налази шупљина дијаметра 9 mm, висине 34 mm. Детектор се налази унутар оловне заштите дебљине 12 cm, са 3 mm Cu унутар слоја заштите. Ови слојеви олова имају функцију да апсорбују гама зраке из околине и смање шум спектра. Хлађење детектора се постиже течним азотом, температуре -196°C (*Stanković I, 2014; Knežević D, 2012*).



Слика 4.14. Детекторски систем коришћен у раду.

Релативна ефикасност уређаја је 35,6%, а енергијска резолуција је 1,77 keV.

Кроз претпојачавач и појачавач сигнали се воде до вишеканалног анализатора (MCA). MCA је директно повезан на рачунар, где се спектри снимају и анализирају. Анализа спектра се врши софтвером *Canberra Genie 2000*. Програм рачуна концентрацију активности радиоизотопа узимајући у обзир све значајне гама линије након одузимања спектра добијеног од позадинског зрачења, односно *background* спектра. Мерне несигурности су процењене са 95% тачности.

4.3.4. ОПИС МЕТОДЕ

Одређивање концентрације активности радона у води коришћењем директне гама спектрометрије се базира на:

• сакупљању и складиштењу репрезентативних узорака воде у одговарајуће контејнере;

• детекцији и квантификовању гама зрачења краткоживећих радиоизотопа који настају распадом радона у узорку воде (Табела 4.1) (*Water Quaility-Radon 222, 2013*).

Табела 4.1: Енергије и вероватноће емисије главних X- и γ-емитера кратко-живећих потомака ²²²Rn

Радионуклид	Време полураспада [min]	Енергија [keV]	Вероватноћа емисије [%]
²¹⁴ Pb 26,8	26.8	351,93	35,60
	20,8	295,22	18,50
		609,31	45,49
²¹⁴ Bi	10.0	1 764,49	15,28
	19,9	1 120,29	14,907
		1 238,11	5,827

Концентрација активности 222 Rn је одређена на основу гама линија из спектра који емитују 214 Pb и 214 Bi директном гама-спектрометријом узорка воде, под условом да је радон у равнотежи са продуктима распада. Мерење треба да се започне у тренутку када је радон достигао радиоактивну равнотежу са потомцима, односно, најмање 3 сата након завршетка узорковања.

Одређивање концентрације активности ²²²Rn у узорцима воде треба да буде одређена високо-резолуционом гама спектрометријом у складу са захтевима ISO 10703.

Избор опреме за мерење треба да узме у обзир спецификације дате у IEC 60973 и IEC 61151.

Калибрација треба да прати упутства описана у IEC 61452, користећи, на пример, радијум-226 као калибрациони извор.

Битно је нагласити да вода треба да се узоркује у бочицама које су направљене од материјала који не пропуштају радон, који нису хигроскопни и који не садрже радионуклиде који су и сами гама емитери (*Water Quaility-Radon 222, 2013*).

Узорци воде се узимају у флашама запремине 1 l, у складу са техникама описаним у поглављу 5. При мерењу, вода се сипа у Маринели посуду. Идеално би било када би се вода сипала до врха посуде и да се при затварању поклопац посуде осигура материјалом који ће спречити дифузију радона. Пожељно је да време мерења буде што дуже (у овом раду време мерења је било око 20 h).

Након завршетка мерења, софтвер *Canberra Genie2K* рачуна вредности концентрације активности узимајући у обзир 15 радиоизотопа, а даје и средњу вредност концентрације активности добијене на основу активвности 226 Ra, 214 Pb, 214 Bi и 210 Pb. Аутоматски се рачуна и мерна несигурност.

5. ПРОБЛЕМИ УЗОРКОВАЊА

Мерне несигурности одређивања концентрације активности радона у води су у највећој мери узроковане самом техником узорковања. С обзиром да радон поседује особину да лако дифундује, при сваком контакту воде са ваздухом долази до губитка радона. Велика пажња се у свим научним радовима посвећује управо самом начину узорковања, те се тражи она техника која би дала најбоље резултате.

При узимању узорака, било би погодно да се узорци сипају директно у боце у којима ће се и вршити мерење. Уколико се вода пресипа из боца у мерне посуде, сасвим је сигурно да ће се одређени део радона изгубити у контакту са ваздухом. Такође је битан и избор самих бочица за узорковање. У случају коришћења пластичних боца, постоји већа вероватноћа да радон еманира, док се у случају стаклених мерних боца сасвим сигурно може тврдити да ће се радон дуже задржати унутар сам запремине бочице

При мерењу радона RAD7, могуће је воду сипати у стакленим мерним бочицама (Слика 5.1), и то различитих запремина—40 ml и 250 ml. Од стране произвођача (*RAD7 RAD H2O*) препоручено је да се узорци воде, за коју се очекује висока концентрација активности радона, мере у бочицама од 40 ml, док се узорци за које се очекује ниска концентрација активности радона мере у бочицама од 250 ml.



Слика 5.1. Стаклени виали за мерење радона RAD7

За мерења на НРGe детектору узорци су сипани у пластичне флаше запремине 1 l, а потом пресипани у Маринели боцу запремине 450 ml (Слика 5.2). Мана при овом узорковању је што се при пресипању доводи вода у контакт са ваздухом и одређени проценат постојећег радона дифундује и што се Маринели боца не пуни до врха, како не би дошло до изливања воде при мерењу, што би оштетило детектор. Препоручљиво би било да се Маринели посуда на месту узорковања напуни потапањем у кофу, до врха, али за то су потребне Маринели посуде које боље затварају, како не би дошло до поменутог изливања воде.



Слика 5.2. Маринели посуда.

У раду су коришћене две технике узорковања. Прва техника се састоји у томе да се бочица у којој се узима узорак постави директно испод млаза воде (Слика 5.3), пусти се да вода прелива и бочица се затвара под млазем. Потом се бочица окрене и идеално би било када се ниједан мехурић ваздуха не би појавио. У зависности од карактеристика самог извора воде (јачи или слабији млаз) зависи и да ли ће узети узорак бити потпуно без мехурића. Код слабијег млаза је то практично немогуће постићи.



Слика 5.3. Техника директног узорковања. Техника се састоји у томе да се флашица поставља директно под млаз воде, а кад се флашица напуни, затвара се чепом под млазем. Приказана чесма је у Нишкој бањи.

Потом смо узорке узели користећи другу технику узорковања, која подразумева коришћење гуменог црева и кофе, као што је приказано на Слици 5.4. Потребно је обезбедити да пречник гуменог црева одговара пречнику отвора цеви чесме. Вода се пусти да напуни кофу, бочица се урања у воду и под водом се и затвара чепом. На тај начин је обезбеђено да знатно мање ваздуха остаје у мерној бочици.



Слика 5.4. Посредна техника узорковања. Кофа се пуни водом, бочица се зарања у воду и под водом се затвара чепом.

Током узорковања, препоручује се да се минимизира утицај:

- температуре воде
- турбуленција у води
- запремине ваздуха у контејнеру

Описане технике узорковања су коришћене код обе методе, с тим што се разликују запремине узорка.

Током транспорта и складиштења узорци треба да буду на температури испод температуре воде у моменту скупљања узорака – "оригинална" температура (али изнад 0°С) док се не започне мерење. Контејнер треба да буде заштићен и чврсто затворен. Такође, треба да буде прописно упакован како би се спречило било какво цурење воде.

Период транспорта и складиштења треба да буде што је могуће краћи, с обзиром на кратак период полураспада радона-222, очекивану концентрацију активности и границу детекције мерења коришћене опреме.

При стизању у лабораторију, узорци би требало да се држе на температури испод оригиналне температуре (али изнад 0°С), уколико се не шаљу одмах на анализу. Препоручено је да се узорци анализирају што пре након времена постизања равнотеже радона и његових

потомака. Искуство је показало да време између узорковања и анализе узорака не би требало да буде дуже од 48h (*Water Quaility-Radon 222, 2013*).

6. МЕРНЕ ЛОКАЦИЈЕ

У раду су узимани узорци са две локације, у Новом Саду и у Нишкој бањи.

Узорци воде из Новог Сада су узети са две чесме (Слика 6.1), са СПЕНСА (Слика 6.1а) и из Лиманског парка (Слика 6.1б), за које се знало да имају ниски, али мерљиви садржај радона – изнад границе детекције *(Todorović, et al, 2012)*.





б)

Слика 6.1. а) Јавна чесма СПЕНС у Новом Саду, б) Јавна чесма у Лиманском парку

Нишка бања је најистраженије врело у Србији кад је реч о концентрацији радона у води. Висок садржај радона је измерен на извору "Школска чесма", чак 648 Вq·I⁻¹ (*Nikolov et al, 2012*). Подручје Нишке бање карактерише комплексна геологија и тектоника. Око термалне воде се формира слој травертина (бигар), као последица губљења CO₂ из Ca-бикарбоната, дебљине 25 m, а садржај радијума је 470 (40) Вq·I⁻¹ (*Nikolov et al, 2012*). Врело је лоцирано у неогенском басену дебљине 500 m. Испод седимената се налазе мезозојски кречњаци, доломити, доломитични кречњаци и кластични карбонитни седименти. По хемијском саставу термалне воде Нишке бање су мало минерализоване, HCO₃-Ca, електропроводљивост је у распону 540-571 mS·cm⁻¹. Постоји мешање хладних и топлих вода; највиша температура је измерена на извору "Главно врело" (39,6 °C), а најнижа на извору "Школска чесма" (21 °C). Концентрација радона у ваздуху је измерена у интервалу 63,7–1300 kBq·m⁻³ (*Žunić et al, 2006*). Процењена годишња ефективна доза премашује 50 mSv, а регионална средња доза за становништво у Нишкој бањи износи 30 mSv (*Žunić et al, 2007*). У Нишкој бањи је вода узета са три чесме-Школске чесме, Главног врела и Три краља (Слика 6.3).



Слика 6.3. Мерне локације у Нишкој бањи. Горе лево: Три краља, горе десно: Главно врело, доле: Школска чесма.

7. РЕЗУЛТАТИ И ДИСКУСИЈА

Минимална детектабилна активност (MDA) која је добијена је 0,672 Bq·l⁻¹ за RAD7 за време мерења од 20 минута, а 0,45 Bq·l⁻¹ за гама спектрометрију за време мерења око 72 000 секунди (20 h). Минималне детектабилне активности за LSC методу мерења радона у води при коришћењу различитих сцинтилационих коктела приказани су у Табели 7.1 за време мерења од 300 минута.

LSC коктел	MDA [Bq l ⁻¹]
UGAB	0,035
UGF	0,062
MOS	0,059

Табела 7.1. MDA за методу мерења радона у води за различите сцинтилационе коктеле

Први мерени узорци узети су са јавне чесме у Новом Саду, мерном техником која је првобитно описана. Узорци воде који су били намењени за мерење гама спектрометријом узети су у пластичним флашама запремине 1 l. Вода за мерење на RAD7 је сипана директно у стаклене флашице запремине 250 ml јер се очекивала ниска концентрација активности радона. С обзиром да је време полураспада радона релативно кратко, вредност концентрације активности која се добија мерењем мора се кориговати на време које је протекло између узорковања и тренутка мерења. Корекција се врши узимајући у обзир закон радиоактивног распада изражен преко активности радиоактивног узорка:

$$A = A_0 \cdot e^{\frac{-\ln 2}{T_{1/2}} \cdot t}$$
 7.1

У горњој релацији A је вредност концентрације активности која се добија мерењем, а A_o је она концентрација активности која је била у моменту узорковања, док је t време протекло од момента узорковања до момента мерења. Стога, да бисмо нашли A_o, потребно је да за сваку измерену вредност извршимо рачун:

$$A_0 = A \cdot e^{\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t}$$
 7.2

Мерне несигурности одређивања концентрације активности су рачунате као вероватна грешка, узимајући у обзир време полураспада, измерену активност и време протекло од узорковања до мерења. Резултати мерења воде са СПЕНСА обема методама су дати у Табели 7.2. У табели је наведено и време t – време протекло од момента узорковања до мерења, дато у минутима. У Табели 7.2. је приказана коригована активност.

МЕТОДА	t [min]	A [Bq·l ⁻¹]
ГАМА СПЕКТРОМЕТРИЈА	147	21,0±1,0
	1613	22,5±0,8
	4482	19,9±1,1
D 4 D 7	63	17,5±1,8
	1513	17,6±0,9
KAD7	4561	16,8±2,2
	6068	14,8±1,9

Табела 7.2. Резултати узорака воде са СПЕНСА узоркованих првом техником (директно са

чесме)

Узорци воде узети из Нишке бање су такође мерени обема методама, док је узорковање вршено првом техником (директним пуњењем боце водом са чесме). С обзиром да је за Нишку бању била очекивана висока концентрација активности, вода која се мерила на RAD7 је узоркована у стаклене виале запремине 40 ml, док су узорци који су мерени гама спектрометријом узети у пластичним боцама запремине 1 l, исто као у претходном случају. Корекције и мерне несигурности су рачунате на исти начин.

За вредности које даје RAD7 је већ било примећено да су нешто ниже у односу на вредности које дају друге методе. Разлог је што RAD7 има пумпу која извлачи радон, а која временом слаби и што је RAD7 калибрисан за мерење радона у ваздуху, те је потребно извршити корекције на резултат који се добија мерењем.

МЕТОДА	ЛОКАЦИЈА	t [min]	A [Bq·l ⁻¹]
		1131	634±17
	ШКОЛСКА	2732	596±34
	ЧЕСМА	4160	512±26
ГАМА СПЕКТРОМЕТРИЈА		6941	122±4*
	ГЛАВНО ВРЕЛО	5167	16,3±0,8*
	КРАЉЕВА ЧЕСМА	1045	6,2±0,4
		1180	404±12
RAD7	ШКОЛСКА	4280	331±17(WAT 40)
	HECMA	8596	399±33 (WAT 40)
	ГЛАВНО ВРЕЛО	1191	21,3±2,8

Табела 7.3. Резултати мерења воде из Нишке бање гама спектрометријом и RAD7

* Узорак воде је стајао у Маринели боци која није била напуњена до врха, стога је радон дифундовао и добијена је нижа концентрација активности. Узорак није узет у даља разматрања.

С обзиром да је приликом Интеркомпарације мерења радона у ваздуху RAD7 (*пројекат REP 9127/2015*) детектором примећено слабљење пумпе у самом инструменту, очекивано је да су резултати које добијамо овим детектором нижи од реалних активности. Корекциони фактор који је добијен за радон у ваздуху приликом Интеркомпарације је био 0,8.

На основу поређења концентрација активности за узорке воде високих концентрација радона, добијено је да је однос вредности које даје RAD7 и гама спектрометрија следећи:

$$\frac{A_{RAD7}}{A_{\gamma}} = 0.65$$
 7.3

Дакле, на <u>високим концентрацијама</u> активности радона, добијен је фактор дат релацијом 7.3, односно вредности које даје RAD7 је потребно <u>делити фактором 0,65</u>.

Исто разматрање је примењено и на узорке воде са јавне чесме СПЕНС. С обзиром да је у питању ниска концентрација активности, било је очекивано да фактор којим је потребно делити резултате добијене RAD7 неће бити исти. Рачун је показао да је он:

$$\frac{A_{RAD7}}{A_{\gamma}} = 0,789$$
7.4

Дакле, на ниским концентрацијама активности радона, вредности које даје RAD7 је потребно делити фактором 0,789.

Оба резултата дата релацијама 7.3. и 7.4. су добијена уколико се за референтне вредности узимају вредности добијене гама спектрометријом, јер узорци нису мерени и LSC техником. При поређењу резултата које даје RAD7 и LSC техника, добијен је да је однос вредности 0,756 (*Jakonić et al, 2015*).

Кориговани резултати добијени дељењем вредности које мери RAD7 одговарајућим фактором (7.3 и 7.4) упоредно са резултатима гама спектрометрије су приказани у Табели 7.4. Сви наредни резултати добијени RAD7 су, ради прегледности резултата, дати са вредностима већ дељеним одговарајућим фактором.

Вредности узорака из Нишке бање високих концентрација активности су дали боље резултате када је вода мерена у стакленим бочицама запремине 40 ml, чак и након неколико дана који су протекли између узорковања и мерења.

Табела 7.4. Упоредно приказани резултати мерења гама спектрометријом и RAD7 узорака воде са СПЕНСА и из Нишке бање, узоркованих првом техником (директним пуњењем боца

ЛОКАЦИЈА	ГАМА СПЕКТРОМЕТРИЈА А [Bq·l ⁻¹]	RAD7 A [Bq·l⁻¹]	
	21,0±1,0	22,2±1,8	
СПЕНС	22,5±0,8	22,3±0,9	
	19,9±1,1	21,3±2,2	
		18,8±1,9	
ШКОЛСКА ЧЕСМА	634±17	622±12	
	596±34	509±17	
	512±26	614±33	

на чесми)

Резултат добијен RAD7, који и након дељења фактором 7.3, показује сувише ниску концентрацију активности радона ((509±17) Bq·l⁻¹), се може приписати лошем узорковању, односно чињеници да су се у мерним бочицама појавили мехурићи ваздуха, што доводи до еманације радона.

Узорак који је мерен гама спектрометријом је стајао у пластичној боци, затим је пресипан у Маринели посуду, услед чега је одређен проценат садржаја радона у узорку изгубљен, те резултат од (512 \pm 26) Вq·l⁻¹ представља знатно нижу концентрацију активности радона. Исти узорак је у случају мерења RAD7 стајао у стакленим мерним бочицама и дао је много реалнији резултат након корекције добијеним фактором, те се може закључити да су стаклене бочице за узорковање и мерења бољи избор у случају мерења радона у води.

Вредности добијене мерењем LSC методом су приказане у Табели 7.5.

Табела 7.5. Резултати мерења LSC методом узорака из Нишке бање, узоркованих првом техником, коришћењем различитих сцинтилационих коктела. Ради поређења приказани су и резултати добијени гама спектрометријом и RAD7.

ЛОКАЦИЈА	UGAB A [Bq·l ⁻¹]	UGF A [Bq·l ⁻ 1]	MOS A [Bq·l ⁻ 1]	Гама спектром. А [Bq I ⁻¹]	RAD7 A [Bq·l ⁻]
ШКОЛСКА ЧЕСМА	429±5	612±7	674±11	634±17	622±12
ГЛАВНО ВРЕЛО	27,6±0,8	38,5±1,2	41,4±1,3	-	33,3±2,4
ТРИ КРАЉА	5,1±0,3	7,1±0,5	8,1±0,5	6,6±0,3	-

Поређењем резултата узорака мерених LSC техником различитим сцинтилационим коктелима и резултата добијених другим техникама (гама спектрометријом и RAD7), закључује се да највеће одступање показује монофазни сцинтилациони коктел *Ultima Gold AB* (*UGAB*). Иако *Ultima Gold AB* (*UGAB*) сцинтилациони коктел има особину да добро раздваја α -спектар од β -спектра, није дао очекиване резултате, већ показује значајно ниже вредности концентрације активности ²²²Rn. Сцинтилациони коктели који формирају двофазне узорке (*Mineral Oil Scintillator (MOS)* и *Ultima Gold F (UGF)*) показују боље резултате, те се може закључити да боље везују радон из воде.

Ради поређења ефикасности техника узорковања, вода са две јавне чесме у Новом Саду је узоркована и једном и другом техником, а потом су узорци мерени коришћењем све три мерне технике. Резултати су приказани у Табели 7.6.

Узорци мерени LSC техником су мешани са два сцинтилациона коктела- *Ultima Gold AB* (*UGAB*) и *Mineral Oil Scintillator (MOS*). Резултати су показали да *UGAB* даје ниже вредности концентрација активности, што је у складу и са закључком добијеним на основу резултата мерења узорака из Нишке бање. Са друге стране, *MOS* сцинтилациони коктел даје нешто више вредности у односу на друге две референтне коришћене технике.

Табела 7.6.	Резултати мерења	узорака воде са	две јавне чесме	у Новом Саду	у узоркованих
	2		, , <u>,</u>	2 1 2	

05010	TOVILLICONO
ооема	техникама

ЛОКАЦИЈА/ ТЕХНИКА УЗОРКОВАЊА	LSC UGAB A [Bq I ⁻¹]	LSC MOS A [Bq I ⁻¹]	Гама спектром. А [Bq l ⁻¹]	RAD7 A [Bq l ⁻¹]
СПЕНС Директно са чесме	18,4 ± 2,1	27,8 ± 2,5	21,0 ± 0,7	19,7± 1,1
СПЕНС Кофа- чесма	19,7 ± 1,7	28,6 ± 2,8	22,3 ± 1,2	21,2±1,9
ЛИМАН Директно са чесме	25,9 ± 2,0	36±3	25,7 ± 2,5	27±1
ЛИМАН Кофа- чесма	23,1 ± 1,3	40,1 ± 2,6	23,4 ± 1,7	24±1

Вода из Нишке бање, са две локације, Школске чесме и Главног врела, је узоркована обема техникама и потом мерена гама спектрометријом и RAD7. Резултати су приказани у табели 7.7. Мерењем RAD7 воде са Школске чесме директно на месту узорковања је добијен резултат од (634±41) Bq·l⁻¹, али је релативна влажност била 14%. На релативну влажност није било могуће значајније утицати коришћењем одвлаживача ваздуха, те је вредност добијена са нешто већом мерном несигурношћу.

Табела 7.7. Резултати мерења узорака воде из Нишке бање узоркованих обема техникама

ЛОКАЦИЈА	ТЕХНИКА УЗОРКОВАЊА	LSC UGAB A [Bq l ⁻¹]	LSC UGF A [Bq·l ⁻ 1]	ГАМА СПЕКТРОМЕТРИЈА* А [Bq·l ⁻¹]	RAD7 A [Bq·l ⁻¹]
ШКОЛСКА ЧЕСМА	Директно са чесме	438±6	637±7	286±15	616±18
	Кофа-чесма	-	-	341±15	677±22 (WAT 40)
ГЛАВНО ВРЕЛО	Директно са чесме	-	-	37,2±0,4	39±5
	Кофа-чесма	-	-	-	44±3

На основу резултата у Табели 7.6. и 7.7. добијени су следећи закључци:

• У случају ефикасности техника узорковања, на први поглед се чини да техника кофачесма генерално даје више вредности концентрација активности, међутим вода узета из Лиманског парка показује другачији образац. Примећено је да чесма у Лиманском парку има знатно јачи млаз, него чесма СПЕНС што омогућава да се и директним узорковањем у мерној боци добије добар и репрезентативан узорак. Свакако на нижим концентрацијама активности резултати са обе технике узорковања дају упоредиве резултате.

• Узорци који су мерени гама спектрометријом су стајали у пластичним посудама дуже од два дана, тачније први узорак 3,2 дана, а други узорак 4,01 дана. На основу тога се може закључити да узорци не би требало да стоје дуже од два дана јер се тада добијају резултати са много нижим концентрацијама радона него што су реалне.

• Сувише ниска вредност добијена гама спектрометријом, се поред тога што су узорци стајали пар дана, може објаснити и чињеницом да су коришћене другачије PVC флаше за узорковање, у односу на првобитна мерења воде из Нишке бање, које су пропустиле знатно већи удео радона у води.

Узорци воде са Школске чесме су мерени и након стајања од ~20 дана, припремљени са два сцинтилациона коктела, *Ultima Gold AB (UGAB)* и *Ultima Gold F (UGF)*, а потом упоређени са резултатима добијеним са истим коктелима, али мереним један дан након узорковања. Сви узорци су узорковани истог дана, 21.6.2017, и припремљени истог дана, 22.6.2017, један дан након узорковања. Резултати су приказани у Табели 7.8.

Табела 7.8. Резултати узорака са Школске чесме добијени LSC техником, припремљених са два сцинтилациона коктела, UGAB и UGF, мерених 2 дана и ~20 дана након припреме узорака.

ЛОКАЦИЈА	ДАТУМ МЕРЕЊА	UGAB A [Bq l ⁻¹]	UGF A [Bq·l ⁻¹]
ШКОЛСКА	23.6.2017.	429±5	612±7
ЧЕСМА	10.7.2017.	420±61	671±79

Резултати у Табели 7.8. су потврдили закључак да дефинитивно коктел UGAB даје ниже вредности од реалних, док се сцинтилациони коктел UGF опет показао као најбољи за мерење радона у води. Сви резултати везани за LSC методу су у складу са резултатима објављеним у раду (Nikolov et al, 2017), у ком је такође добијено да сцинтилациони коктел UGAB даје ниже вредности од реалних, MOS нешто више, док се UGF показао као сцинтилациони коктел са најбољим перформансама за мерење радона.
Што се тиче времена које је протекло између узорковања и мерења, оно није показало значајнији утицај на добијене вредности – резултати добијени 2 дана након узорковања и 20 дана након узорковања су упоредиви; једини утицај времена које је протекло се огледа у мерној несигурности, која је за резултате мерене након 20 дана већа од 10%, али су резултати и даље у оквиру реалних вредности.

Добијени резултати су указали да је LSC метода погодна и за мерење узорака који стоје дуже времена након узорковања уколико се узорци припреме одмах након узорковања, при чему је једина корекција коју је потребно уводити прерачунавање на концентрацију у тренутку узорковања коришћењем релације 7.2.

8. ЗАКЉУЧАК

На основу добијених експерименталних резултата, изведени су корисни закључци који одређују предности и мане сваке од коришћених метода мерења и техника узорковања, а дефинисани су и правци даљих истраживања и усавршавања метода.

RAD7 метода мерења радона у води има предност у односу на друге две јер се резултати добијају релативно брзо, већ након 20 минута. Друга предност је што је RAD7 преносиви детектор, те се може користити за теренска мерења. Међутим, и у овом раду и у ранијим радовима је добијено да су вредности које даје RAD7 нешто ниже у односу на вредности које дају друге методе, што је нарочито изражено при високим концентрацијама радона. Разлог је што ефикасност мерења зависи од пумпе која извлачи радон из воде, као и што је калибрација вршена за мерење радона у ваздуху, па је у сваком случају потребно вршити корекције на добијене вредности. Фактор којим се коригују вредности је потребно проверавати с времена на време, управо из разлога што на вредност концентрације активности утиче и ефикасност пумпе, а која временом слаби. У случају мерења RAD7 коришћене су стаклене мерне бочице, које су се показале бољим избором него пластичне флаше, које пропуштају одређени удео радона у узорку. Такође, резултати су показали и да је у случају високих концентрација бољи избор за мерење стаклена бочица запремине 40 ml, док је у случају ниских концентрација препоручљиво мерити у бочицама запремине 250 ml. Битно је нагласити да се у мерним бочицама не смеју наћи друге течности (нпр. алкохол, киселина...) јер у том случају мерни систем не функционише. Још једна од предности је што се узорак може узети директно у мерној боци.

Гама спектрометријска метода мерења радона у води се показала као метода која даје добре резултате при чему је припрема узорака једноставна. Што се тиче времена које протекне између узорковања и мерења, закључено је да оно не би смело бити дуже од 3 дана– у супротном се добијају непоуздани резултати, који дају вредности знатно ниже него што су реалне. Препорука при мерењу гама спектрометријом би било да се узорци воде сипају у Маринели посуде до врха и потом обложе материјалом који ће умањити дифузију радона. Такође, било би препоручљиво и да се узорци воде узимају у стакленим флашама запремине 1 l, што би водило ка тачнијим резултатима или, уколико је то могуће, узорковати воду директно у Маринели посуду и мерити у што је краћем периоду могуће.

LSC метода има предност у односу на друге две јер су се сцинтилациони коктели показали као много бољи "хватачи" радона-радон има већи афинитет ка коктелу и дифундује из узорка у коктел. Та особина сцинтилационих коктела омогућава да, уколико се узорак одмах припреми са коктелом, може да стоји дуже време, а да радон не еманира из узорка.

70

Јована Кнежевић

Идеално би било када би се на месту узорковања припремали сцинтилациони коктели. Ипак, припрема узорака за мерење LSC методом захтева компликованију припрему него у претходне две методе. Добијено је да мерење узорака припремљених одмах након узорковања, даје добре резултате и након дужег времена, додуше са нешто већом мерном несигурношћу. На основу резултата који смо добили за све технике у случају узорака који стоје дуже од 3 дана, једино LSC техника даје задовољавајуће резултате и као таква се ,у том случају, једина може користити за добијање поузданих резултата. Предност би била и што се у Quantulusu 1220^{ТМ} може мерити више узорака одједном. У поређењу монофазних и двофазних узорака, у случају мерења концентрације активности ²²²Rn , као много бољи су се показали двофазни узорци. Коришћење различитих сцинтилационих коктела је дало различите резултате. Највећа одступања и најниже концентрације активности ²²²Rn у мереним узорцима воде показао је Ultima Gold AB, стога се не може сматрати погодним за мерења радона у води. Посебно погодним су се показали Ultima Gold F и Mineral Oil Scintillator. Иако је Mineral Oil Scintillator дефинисан од стране произвођача као најпогоднији за мерење радона у води, вредности концентрација активности које даје су нешто више у односу на друге технике, па или није најбољи или је потребно урадити додатна подешавања течног сцинтилационог детектора како би се поправила калибрација система са овим сцинтилационим коктелом.

Што се тиче самих техника узорковања, на основу добијених резултата се не може једнозначно одредити која техника даје боље резултате. У случају узорака воде из Нишке бање, генерално су добијени бољи резултати узорковањем другом техником, односно коришћењем кофе. Исти случај је и са узорцима узетим са јавне чесме СПЕНС, при чему је примећено је млаз воде из чесме слаб. Са друге стране, за воду узоркована из Лиманског парка је добијено да боље резултате даје прва техника узорковања, односно пуњење флашица директно са чесме, али је примећено да је млаз воде са чесме знатно јачи него у случају чесме СПЕНС, те је закључак да када је млаз воде слабијег интензитета, техника узорковања кофа—чесма даје боље резултате, док у случају интензивнијег млаза обе технике дају упоредиве резултате у оквиру експерименталне грешке. Што се тиче поређења техника узорковања на вишим и нижим активностима, закључено је да на нижим концентрацијама активности радона у води обе технике се могу сматрати добрим, док је на вишим разлика у техникама узорковања више изражена и узорци узорковани техником кофа—чесма дају боље резултате.

Целокупни закључак рада би био да све три методе имају својих предности и мана, али дају довољно добре резултате да би могле практично да се користе, уз корекције и повремене провере тачности метода. Технике узорковања не дају исте резултате, међутим, не може се са сигурношћу тврдити која је засигурно боља, те су даља истраживања потребна. С обзиром да

71

је узорковање при мерењу радона у води један од главних узрока мерних несигурности, свакако да је проналажење оптималне технике узорковања један од важнијих задатака.

Протеклих година је већа пажња у литератури и у медијима била посвећена радону у ваздуху и радиолошком хазарду радона у ком је препознат као други по реду узрочник рака плућа. Услед тога је развијен велики број метода и техника за мерење радона у ваздуху и предузете су одговарајуће методе уклањања радона у ваздуху и контроле земљишта, грађевинског материјала, итд. Међутим, све се више пажња усмерава и на радон у води, иако се процењује да су ризици од ингестије много мањи од ризика инхалацијом радона. Ипак, посебно се мора водити рачуна о води коју становништво користи за пиће, с обзиром да је конзумација свакодневна у току године, те сумарна доза може, али и не мора бити занемарљива. Узорци воде који су анализирани у случају воде из Новог Сада, са две јавне чесме, су ниских концентрација активности радона, док је вода из Нишке бање, са Школске чесме, показала концентрације активности које су и до 6 пута веће од препорученог нивоа Европске комисије (100 $Bq \cdot l^{-1}$). Посебна околност је што се Школска чесма у Нишкој бањи налази поред обданишта и што и одрасли и деца пију воду директно са чесме, а поред тога и читаво подручје Нишке бање у ваздуху садржи високу концентрацију радона, што свакако има радиолошки хазард по становништво.У ваздуху поред Школске чесме је измерено да је концентрација радона 1940 Вд·m⁻³.

Циљ рада је био поређење различитих метода и техника узорковања, уз успутне проблеме који утичу на тачност резултата мерења. Поред тога, добијено је да и гама спектрометријска метода, која се заснива на успостављању секуларне радиоактивне равнотеже између радона и његових краткоживећих потомака, а потом мерењу њихових концентрација активности, метода која даје добре резултате и може бити корисна у лабораторијама које немају развијене алфа спектрометријску или течну сцинтилациону методу. С обзиром да је радон у води препознат као потенцијални радиолошки хазард, сигурно је да ће се процес усавршавања и испитивања метода наставити и у наредном периоду.

72

ЛИТЕРАТУРА

- Appleton J.D. (2005), Radon in air and water In: Essentials of Medical Geology: Impacts of the Natural Environment on Public Health, Selinus, O. (ed). Elsevier Amsterdam, 227-262.
- Darby et al. (2005), Radon in homes and risk of lung cancer: Collaborative analysis of individual data from 13 European case control studies, BMJ (British Medical Journal), 330 (7485):223.
- IAEA. (2003), *Guidelines for Radioelement Mapping using Gamma Ray Spectrometry Data*, Techical Report No. IAEA-TECDOC-1363, International Atomic Energy Agency.
- EPA Method 913.0. (1991), 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.
- European Commission (2001), Commission recommendation of 20th December 2001 on the protection of the public against exposure to radon in drinking water, 2001/982/Euratom, L344/85.
- Gomez Escobar et al. (1996), Gomez Escobar V., Vera Tome F., Lozano J.C., Martin Sanchez A, Determination of ²²²Rn and ²²⁶Ra in aqueous samples using a low-level liquid scintillation counter, ApplRadiat Isot 47(9–10): 861–867.

http://atom.kaeri.re.kr/nuchart/. (n.d.).

http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/akta-u-pripremi.htm. (n.d.).

- Stojković I. (2015), Doktorska disertacija, Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama, Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu.
- Jakonić et al. (2015), Jakonić I, Tenjović B, Nikolov J, Vesković M, Mrđa D, Todorović N, Improvement od measuring methods and instrumentation concerning 222Rn detrmination in drinking waters-RAD7 and LSC tecnique, Applied Radiation and Isotopes.
- Janković et al. (2012), Janković M, Todorvić N, Nikolov J, *Natural radionuclides in drinking waters in Serbia*, Applied Radiation and Isotopes 70: 2703-2710.

- Jowzaee, S. (2013), Determination of selected natural radionuclide concentration in the southwestern Caspian groundwater using liquid scintillation counting, Radiat. Prot.Dosim. 157(2): 234–241.
- Kitto, M. (1994), Characteristics of liquid scintillation analysis of radon in water, J.Radioanal. Nucl. Chem. 185(1): 91–99.
- Knežević D. (2012), Master rad, Komparativna analiza simulirane i eksperimentalne efikasnosti germanijumskog detektora, Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu.
- Krewski et. al. (2005), Krewski D, Lubin J.H, Zielinski J.M, Alavanja M, Catalan V.S, Field R.W, Klotz J.B, Létourneau E.G, Lynch C.F, Lyon J.I, Sandler D.P, Schoenberg J.B, Steck D.J, Stolwijk J.A, Weinberg C, Wilcox H.B, *Residental radon and risk of lung cancer:* a combined analysis of 7 North American case-control studies, Epidemiology, 16(2):137-145.
- Krmar, M. (2013), Uvod u nuklearnu fiziku, Novi Sad, Univerzitet u Novom Sadu, Prirodnomatematički fakultet.
- L'Annunziata M. (2012), Handbook of Radioactivity Analysis, Academic Press, 3rd edition.
- Leo W. (1994), *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg GmbH.
- Marinkov, L. (1976), Osnovi nuklaerne fizike, Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet.
- Montaña et al. (2013), Montaña M, Fons J, Corbacho J.A, Camacho A, Zapata-Garcia D, Guillén J, Serrano I, Tent J, Baeza A, Llauradó M, Vallés I, A comparative experimental study of gross alpha methods in natural waters, J Environ Radioactiv 118: 1–8.
- Mrđa, D, Bikit, I. (2016), *Osnove fizike čestica i nuklearne fizike*, Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu.
- Nikolov et al. (2012), Nikolov J, Todorović N, Petrović Pantić T, Forkašić S, Mrđa D, Bikit I, Krmar M, Vesković M, *Exposure to radon in the radon spa Niška Banja, Serbia*, Radiation Measurements 47: 443-450.
- Nikolov et al. (2014), Nikolov J, Todorović N, Bikit I, Petrović Pantić T, Forkapić S, Mrđa D, Bikit K, Radon in Thermal Watrs in South East Part of Serbia, Radioation Protection Dosimetry 160 (1-3):239-43.
- Nikolov et al (2017), Nikolov J, Stojković I, Todorović N, Vuković S, *Radon in water measurement* – *different LSC methods*, Zbornik radova jedanaestog Simpozija Hrvatskog Društva za zaštitu od zračenja, ISSN 1849-5060, HDZZ – CRPA, Zagreb, 2017.

- Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hranu, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet. Sl. glasnik RS 86/11, од 18.11.2011. и 6.11.2013.
- Pujol Ll, Sanchez–Cabeza J.A. (1997), Role of quenching on alpha/beta separation inliquid scintillation counting for several high capacity cocktails, Analyst 122: 383–385.

RAD7 RAD H2O, Radon in Water Accessory, DURRIDGE Co.

- Somlai et al. (2007), Somlai K, Tokonami S, Ishikawa T, Vancsura P, Gaspar M, Jobbagy V, Somlai J,Kovacs T,²²²Rn concentrations of water in the Balaton Highland and in thesouthern part of Hungary and the assessment of the resulting dose, Radiat. Meas.42: 491–495.
- Stanković I. (2014), Master rad, Monte-Karlo simulacije uticaja matrice uzorka na efikasnost detekcije HPGe detektora, Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Novi Sad.
- Stojković I. (2015), Doktorska disertacija, Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama, Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Novi Sad.
- Todorović et al. (2015), *Different techniques for* ²²²*Rn determination in water samples*, XXVIII Simpozijum DZZSCG, Vršac, 30.9.-2.10.2015.
- Todorović et al. (2014), Todorović N, Jakonić I, Nikolov J, Hansman J, Vesković M, *Establishment* of a method for 222Rn determination in water by low-level liquid scintillation counter, Radiation Protection, Dosimetry , 1-5. doi:10.1093/rpd/ncu240.
- Todorović et al. (2012), Todorović N, Nikolov J, Forkapić S, Bikit I, Mrđa D, Krmar M, Vesković M, Public exposure to radon in drinking water in Serbia, Applied Radiation and Isotopes 70, pp 543-549.
- Tykva R, Berg D. (2004), Man-Made and Natural Radioactivity in Environmental Pollution and Radiochronology,
- UNSCEAR. (2010), Report to the General Assembly with Scientific Annexes: Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York, USA, ISBN: 978-92-1-142274-0.
- US Environmental Protection Agency. (1999), Radon in drinking water health risk reduction and cost analysis. EPA Federal Register, (USEPA, Office of Radiation Programs, Washington, DC).
- Water Quaility-Radon 222. (2013), Part 2: Test-method using gamma-ray spectrometry, BSI Standards Publication.

- (WHO), World Health Organization. (2008), *Guideline for Drinking-Water Quality*, Third Edition, Vol. 1, Geneva.
- Žunić et al. (2007), Žunić Z.S, Kozak K, Ciotoli G, Ramola R.C, Kochowska E, Ujić P, Čeliković I, Mazur J, Janik M, Demajo A, Birovljev A, Bochicchio F, Yarmoshenko I.V, Kryeziu D, Olko P, A campaign of discrete radon concentration measurements in soil in Niška banja town, Serbia, Radiation Measurements 42: 1696–1702.
- Žunić et al. (2006), Žunić Z.S, Kobal I, Vaupotič J, Kozak K, Mazur J, Birovljev A, Janik M, Čeliković I,Ujić P, Demajo A, Krstić G, Jakupi B, Quarto M, Bochicchio F, High natural radiation exposure in radon spa areas: a detailed field investigation in Niska Banja (Balkan region), Journal of Environmental Radioactivity 89: 249–260.

БИОГРАФИЈА

Јована Кнежевић је рођена 23.01.1993. године у Новом Саду. Основну школу "Мирослав Антић" завршава у Футогу, након које завршава Гимназију "Исидора Секулић", природноматематички смер, обе као носилац Вукове дипломе. Године 2012. уписује Природно-математички факултет, смер Професор физике, који завршава 2016. године. Студије наставља на мастер академским студијама нуклеарне физике. Током студија била је учесник великог броја фестивала и промоција физике као науке. Добитник је стипендије Министарства просвете, као и Фонда за младе таленте. У текућој године била је запослена у Гимназији "Јован Јовановић Змај" у Новом Саду, на месту професора физике.



УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ

КЉУЧНА ДОКУМЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА

Редни број:	
РБР	
Идентификациони број:	
ИБР	
Тип документације:	Монографска документација
ТД	
Тип записа:	Текстуални штампани материјал
T3	
Врста рада:	Дипломски рад
BP	
Aymop:	Јована Кнежевић
АУ	
Ментор:	доц. др Јована Николов
MH	
Наслов рада:	Методе мерења ²²² Rn у води
HP	
Језик публикације:	српски (ћирилица)
ЈП	
Језик извода:	српски/енглески
ЈИ	
Земља публиковања:	Република Србија
3П	
Уже географско подручје:	Војводина
УГП	
Година:	2017
ГО	
Издавач:	Ауторски репринт

ИЗ

Место и адреса:	Природно-математички факултет, Трг Доситеја Обрадовића
MA	4, Нови Сад
Физички опис рада:	8 поглавља/76 страна/42 референци/11 табела/29 слика
Φ0	
Научна област:	Физика
НО	
Научна дисциплина:	Нуклеарна физика
НД	
Предметна одредница/ кључне	Методе мерења, ²²² Rn,
речи:	
ПО	
УДК	
Чува се:	Библиотека департмана за физику, ПМФ-а у Новом Саду
ЧУ	
Важна напомена:	нема
BH	
Извод:	У раду су описане и коришћене три методе мерења 222 Rn у
ИЗ	води-алфа спектрометријска метода RAD, алфа
	спектрометријска метода течним сцинттилационим
	детектором Quantulus 1220 TM и гама спектрометријска
	метода HPGe детектором. Поред различитих метода, узорци
	воде су узимани двема техникама узорковања. Узорковање је
	један од главних узорака мерних несигурности, с обзиром да
	је радон гас и лако дифундује из бочица за узорковање.
	Изабране су две локације за узимање узорака, једна са
	високом концентрацијом активности, а друга са ниском
	концентрацијом активности ²²² Rn. Циљ рада је био поређење
	ефикасности метода, као и техника узорковања. Разматран је
	утицај времена које протекне од момента узорковања до
	момента мерења, амбалаже у којој се узоркује вода, а у
	случају LSC методе, поређени су и различити сцинтилациони
	коктели. С обзиром да је радон препознат као радиолошки
	хазард, проналажење оптималне методе мерења радона у
	води представља битан задатак.

Датум прихватања теме од	
НН већа:	03.07.2017.
ДП	
Датум одбране:	14.07.2017
ДО	14.07.2017.
Чланови комисије:	
КО	
Председник:	проф. др Наташа Тодоровић, редовни професор
члан:	доц. др Јована Николов,
члан:	проф. др Маја Стојановић, ванредни професор

UNIVERSITY OF NOVI SAD FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS

KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number:	
ANO	
Identification number:	
INO	
Document type:	Monograph publication
DT	
Type of record:	Textual printed material
TR	
Content code:	Final paper
CC	
Author:	Jovana Knežević
AU	
Mentor/comentor:	Jovana Nikolov, Ph.D, docent
MN	
Title:	Methods of ²²² Rn measurements in water samples
TI	
Language of text:	Serbian (Cyrilic)
LT	
Language of abstract:	English
LA	
Country of publication:	Republic of Serbia
СР	
Locality of publication:	Vojvodina
LP	
Publication year:	2017
РҮ	
Publisher:	Author's reprint
PU	
Publication place:	Faculty of Science and Mathematics, Trg Dositeja Obradovića 4,
PP	Novi Sad

Physical description:	8 chapters/76 pages/42 literature/11 tables/29 pictures
Scientific field:	Physics
Sr Saiantifia diaginling:	Nuclear physics
scientific alsciptine:	Nuclear physics
Subject/Venuender	²²² Dr. moonument
Subject/ Key woras:	Kn, measurement
SKW	
Holding data:	Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovica 4
HD	
Note:	none
N	
Abstract:	
AB	In this dissertation, 3 methods of measuring ²²² Rn, in water, are described and used-alpha spectrometry method RAD7, liquid scintillation counter method using a Quantulus 1220 TM detector and gamma spectrometry using a HPGe detector. Aside from different methods, samples of water were extracted using two techniques of sampling. Water samples were collected from two locations, one with a high concentration of activity, and one with a low concentration of activity of ²²² Rn. The goal was to compare the efficiency of different methods, as well as sampling techniques. The effect of time passing, from the moment of sampling to measuring, was considered, as well as the container in which the water was sampled, and in the case of LSC methods, different scintillation cocktails were compared. Considering founding ²²² Rn measurement is a important assignment
Accepted by the Scientific Board:	03.07.2017.
ASB	
Defended on:	14.07.2017.

DE

Thesis defend board:

DB

President:	Nataša Todorović, Ph.D, full professor
Member:	Jovana Nikolov, Ph.D, docent
Member:	Maja Stojanović, Ph.D, associate profesor