



Univerzitet u Novom Sadu
Prirodno-matematički fakultet
Departman za fiziku



Poređenje metoda za ispitivanje ^{226}Ra u vodi

-master rad-

Mentor:
prof. dr Nataša Todorović

Kandidat:
Predrag Kuzmanović

Novi Sad, juna 2017.

Zahvaljujem se:

Mentoru prof. dr Nataši Todorović, redovnom profesoru Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu na predloženoj temi i korisnim sugestijama tokom izrade ovog master rada. Zahvaljujem joj se takođe na sveobuhvatnoj podršci koju mi je pružila tokom studiranja, uvek imala razumevanja i koja me je uvela u naučno-istraživački rad.

dr Miljanu Pantiću, redovnom profesoru Prirodno-matematičkog fakulteta na Katedri za teorijsku fiziku kondenzovane materije, koji je još u toku osnovnih studija prepoznao moje kvalitete i preporučio me na asistentsko mesto na Visokoj medicinskoj i poslovno-tehnološkoj školi u Šapcu.

dr Luki Nenadoviću, profesoru Visoke medicinske i poslovno-tehnoločke škole u Šapcu čiji će biti asistent na savetima i kolegijalnoj podršci.

dr Jovani Nikolov, docentu Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu na korisnim savetima koje mi je davala da bih uspeo da uradim ovaj rad i uspešnom koordiniranju u protekle dve godine.

dr Ivani Stojković, docentu sa Fakulteta tehničkih nauka Univerziteta u Novom Sadu na pripremi potrebnih uzoraka i pomoći pri obradi rezultata za eksperimentalni deo ovog master rada.

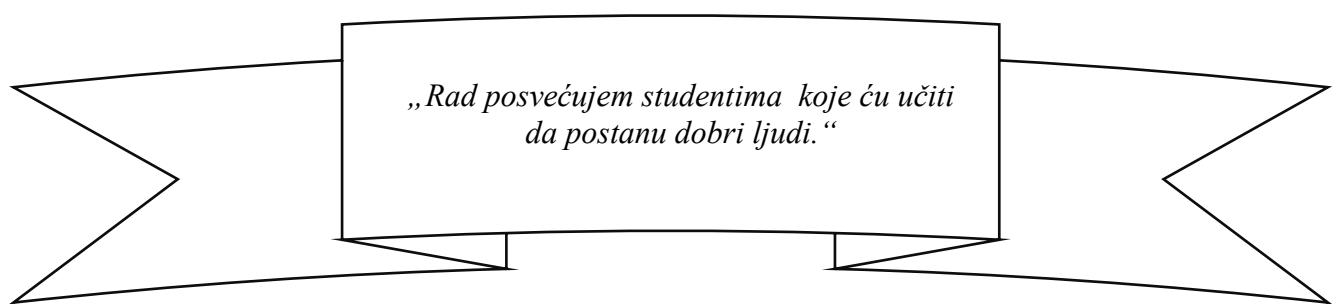
Katedri za Nuklearnu fiziku koja je uvek bila olicenje valjanog rada i pravih vrednosti na Departmanu za fiziku. Posebno se zahvaljujem profesoru Dušanu Mrđi koji je svojom pojavom uvek uspevao da nasmeje, a povrh svega da nauči.

Branislavi Tenjović na iscrpnoj pripremi uzoraka koji su korišćeni za merenja u eksperimentalnom delu master rada.

Kolegi Andreju Vraničaru koji je bio tehnička podrška i tako dao svoj doprinos izradi ovog master rada.

10.06.2017. u Novom Sadu

Predrag Kuzmanović, dipl. prof. fizike



Publikacije proistekle iz ovog master rada:

1. Nataša Todorović, Jovana Nikolov, Ivana Stojković, Andrej Vraničar and **Predrag Kuzmanović**, (2017), *Different techniques for ^{226}Ra determination in water samples*, Abstract book Third East-European Radon Symposium, (TEERAS 2017), Sofia, Bulgaria.
2. **Predrag M. Kuzmanović**, (2016), *Radioaktivnost gradjevinskog materijala*, Zbornik apstrakata naučno-stručne konferencije Studenti u susret nauci (StES 2016), Banja Luka, Republika Srpska.
3. Nataša Todorović, Jovana Nikolov, Miodrag Krmar, Dušan Mrđa, Slavko Todorović, **Predrag Kuzmanović**, (2017), *Assessment of natural radioactivity levels in building materials and residues in Serbia*, Zbornik radova 11. simpozija HRVATSKOG DRUŠTVA ZA ZAŠTITU OD ZRAČENJA (HDZZ) Zagreb, Hrvatska.

Sadržaj:

I TEORIJSKI DEO	10
Uvod	10
Radioekologija pijaće vode	10
Osnovna teza i koncepcija rada	11
1. Prirodna radioaktivnost.....	13
1.1 Zakon radioaktivnog raspada	15
1.2 Aktivnost	17
1.3 Radioaktivni nizovi	18
1.3.1 Sekularna radioaktivna ravnoteža.....	21
1.4 Radium ^{226}Ra	26
1.5 Radon ^{222}Rn	28
1.6 Štetnosti jonizujućeg zračenja	31
1.6.1 Biološki efekti jonizujućeg zračenja	33
1.6.2 Zaštita od alfa zračenja.....	34
1.6.3 Zaštita od beta zračenja	35
1.7 Doze zračenja	35
1.8 Radioekološki problemi vode.....	38
1.9 Zakonska regulativa	40
2 Detekcija zračenja i merenje.....	43
2.1 Vrste detektora	44
2.1.1 Scintilacioni detektori.....	45
2.1.2 Poluprovodnički detektori	48
2.2 Statističke varijacije u brojanju rezultata.....	51
2.2.1 Prirodna distribucija odbroja	51
2.2.2 Normalna kriva greške – dobro rešenje za distribuciju odbroja	52
2.2.3 Minimalda detektibilna aktivnost (MDA)	54

II EKSPERIMENTALNI DEO	55
3.1 Uvodne napomene	55
3.2 Priprema uzorka.....	56
3.3 Tehnike i metode za ispitivanje ^{226}Ra u vodi.....	57
3.3.1 Gama spektrometrija	57
3.3.1.1 Geometrija izvor – detektor.....	59
3.3.1.2 Rezultati i diskusija	61
3.3.1.2.1 Korekcija eksperimentalnih rezultata	63
3.3.1.2.2 Snimanje MDA gama spektrometra u Marineli geometriji	66
3.3.2 Alfa spektrometrija detektorom RAD7.....	67
3.3.2.1 Opšte karakteristike detektora	67
3.3.2.2 Rezultati i diskusija	69
3.3.2.2.1 Snimanje MDA alfa spektrometra RAD7	69
3.3.2.2.2 Merenje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima	71
3.3.2.2.3 Korekcija eksperimentalnih rezultata	71
3.3.3 Alfa/beta spektrometrija detektorom Quantulus 1220TM	73
3.3.3.1 Niskofonski tečni scintilacioni detektor, Quantulus 1220 TM	73
3.3.3.1.1 EPA 913.0 metoda	76
3.3.3.1.1.1 Rezultati i diskusija	78
3.3.3.1.1.1.1 Korekcija eksperimentalnih rezultata	79
3.3.3.1.1.2 Snimanje minimalne detektibilne aktivnosti (MDA) za metodu LSC-EPA 913.0	80
3.3.3.1.2 ASTM D 7283-06 standardna metoda za određivanje ukupne alfa/beta aktivnosti.....	81
3.3.3.1.2.1 Proračuni	83
3.3.3.1.2.2 Rezultati i diskusija	88
3.3.3.1.2.2.1 Korekcija eksperimentalnih rezultata	90
3.3.3.1.2.3 Snimanje minimalne detektibilne aktivnosti (MDA) za LSC ASTM D 7283-06 metodu....	92
4. Poređenje metoda	94
5. Zaključci i pravci daljih istraživanja.....	98
Literatura.....	100
Kratka biografija autora.....	107
KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA.....	108

SPISAK SLIKA

Broj	Naziv	Strana
Slika 1.0	Poreklo vode za piće (raspored vodenih slojeva u litosferi)	11
Slika 1.1	Grafik zavisnosti N/N_0 u funkciji vremena t	16
Slika 1.2	Radioaktivni niz ^{238}U	20
Slika 1.3	Radioaktivni niz ^{235}U	20
Slika 1.4	Radioaktivni niz ^{232}Th	21
Slika 1.5	Radioaktivni niz od tri člana	23
Slika 1.6a	Trajna i prelazna ravnoteža	25
Slika 1.6b	Opšti princip nastupanja sekularne radioaktivne ravnoteže, za slučaj $T_1 \gg T_2$, gde ravnoteža nastupa nakon 7 perioda puluraspa direktnog potomka	25
Slika 1.7	Šema raspada ^{226}Ra	27
Slika 1.8	Kanali raspada ^{226}Ra	27
Slika 1.9	Raspodela godišnje doze koje prima stanovništvo od izlaganja izvorima ionizujućeg zračenja	30
Slika 1.10	Površinske i podzemne vode u litosferi	39
Slika 2.1	Univerzalni princip detekcije zračenja svih detekcionih sistema	43
Slika 2.2	Energetska rezolucija detektora na piku koji formira - FWHM (FWTM)	44
Slika 2.3	Scintilacija kao podvrsta luminescencije	46
Slika 2.4	Izgled fotomultiplikatora	47
Slika 2.5	Poređenje rezolucije poluprovodničkog i scintacionog NaI detektora	49
Slika 2.6	Opšta konfiguracija HPGe detektora	50
Slika 2.7	Histogram distribucije frekvencije za 100 ponovljenih odbroja za dva različita perioda brojanja	52
Slika 2.8	Normalna distribucija (<i>Gausova distribucija</i>)	53
Slika 2.9	Zavisnost minimalne detektibilane aktivnosti (MDA) od vremena merenja, poređenje alfa/beta i beta LSC merne tehnike	54
Slika 3.1	Gama spektrometrijski sistem sa oznakom K u Laboratoriji za Nuklearnu fiziku PMFa u Novom Sadu	59
Slika 3.2	Marinelijska posuda (geometrija), od 450 ml, slikana iz dva pravca, koja je korišćena za gama-spektrometrijska merenja	61
Slika 3.3	Sekularna radioaktivna ravnoteža ^{222}Rn i ^{226}Ra	62
Slika 3.4	Korelacija između referentnih i izmerenih vrednosti ^{226}Ra metodom gama spektrometrije	64
Slika 3.5	Korijvana sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{222}Rn i ^{226}Ra	65
Slika 3.6	Zavisnost MDA od vremena merenja (brojanja) metodom gama spektrometrije	66
Slika 3.7	Korišćeni alfa spektrometar RAD7	68
Slika 3.8	Princip rada spektometra RAD7	68
Slika 3.9	Zavisnost MDA od vremena merenja, protokol Wat-250	70
Slika 3.10	Zavisnost MDA od vremena merenja, protokol Wat-40	70

Slika 3.11	Komparacija MDA za protokole Wat-40 i Wat-250	70
Slika 3.12	Korelacija između referentnih i izmerenih vrednosti ^{226}Ra alfa spektrometrijom RAD7	72
Slika 3.13	Tečni scintilacioni spektrometar Quantulus 1220TM	74
Slika 3.14	Izgled spektra kalibracionog uzorka ^{226}Ra u ravnoteži sa ^{222}Rn (EasyView)	75
Slika 3.15	Spektar uzorka br. 1 pripremljenog sa <i>Ultima Gold F</i> scintilacionim koktelom (EasyView)	78
Slika 3.16	Korelacija između referentnih i izmerenih vrednosti ^{226}Ra metodom LSC EPA 913.0	80
Slika 3.17	Minimalna detektabilna aktivnost (MDA) ^{226}Ra za metodu LSC EPA 913.0	81
Slika 3.18	Podešavanje PSA parametra za merenja ukupne alfa/beta aktivnosti	87
Slika 3.19	Alfa spektar uzorka broj 3 (ROI 500-800 kanala)	88
Slika 3.20	Beta spektar uzorka broj 3 (ROI 1-1024 kanala)	89
Slika 3.21	Korelace funkcije između referentnih i izmerenih vrednosti za ^{226}Ra u alfa i beta-ROI, metoda LSC ASTM D 7283-06	90
Slika 3.22	Zavisnost MDC_α od referentne koncentracije aktivnosti C_0 u $[\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}]$	93
Slika 3.23	Zavisnost MDC_β od referentne koncentracije aktivnosti C_0 u $[\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}]$	93
Slika 3.24	Poređenje zavisnost MDC_α i MDC_β od referentne koncentracije aktivnosti C_0 u $[\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}]$	93
Slika 4.1	Poređenje izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra za sve četiri metode	94
Slika 4.2	Poređenje korigovanih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra optimalnim funkcijama za sve četiri metode	95

SPISAK TABELA

Broj	Naziv	Strana
Tabela 1.1	Neke od osnovnih karakteristika radioaktivnih nizova	19
Tabela 1.2	Težinski koeficijenti za pojedina ljudska tkiva	37
Tabela 1.3	Gl (<i>guidance levels</i>) radionuklida u vodi za piće	37
Tabela 1.4	Izvedene koncentracije aktivnosti pojedinačnih radionuklida u vodi za piće	41
Tabela 2.1	Rezultati ponavljanja odbroja radioaktivnog uzorka	51
Tabela 3.1	Pripremljeni uzorci ^{226}Ra koji su korišćeni u daljim merenjima	56
Tabela 3.2	Parametri koji karakterišu poluprovodnički detektor sa oznakom K	58
Tabela 3.3	Koncentracija aktivnosti tokom praćenja sek. radioaktivne ravnoteže između ^{226}Ra i ^{222}Rn	62
Tabela 3.4	Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti uzoraka ^{226}Ra metodom gama spektrometrije	62
Tabela 3.5	Korigovane koncentracije aktivnosti ^{226}Ra gama spektrometrije prema korelacionoj funkciji	64
Tabela 3.6	MDA ^{226}Ra za odgovarajuće vreme merenja metodom gama spektrometrije	66
Tabela 3.7	Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti uzoraka ^{226}Ra metodom alfa spektrometrije detektorom RAD7	71
Tabela 3.8	Korigovani rezultati uzoraka ^{226}Ra merne tehnike detektora RAD7 prema korelacionoj funkciji	73
Tabela 3.9	Izmerene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima sa Ultima Gold F scintilatorom	78
Tabela 3.10	Korigovane koncentracije aktivnosti ^{226}Ra prema korelacionoj funkciji za metodu LSC EPA 913.0	79
Tabela 3.11	MDA ^{226}Ra za vremena 300 i 1200 minuta brojanja <i>blank-a</i> za metodu LSC EPA 913.0	80
Tabela 3.12	Eksperimentalni rezultati koncentracija aktivnosti ^{226}Ra dobijeni metodom ASTM D 7283-06 u alfa i beta ROI	89
Tabela 3.13	Korigovani eksperimentalni rezultati koncentracija aktivnosti ^{226}Ra dobijeni metodom ASTM D 7283-06 u alfa i beta ROI prema korelacionim funkcijama	91
Tabela 3.14	MDA ($\text{MDC}_{\alpha/\beta}$) za pojedinačne uzorce merene metodom LSC ASTM D 7283-06	92
Tabela 4.1	Poređenje rezultata dobijenih za sve tri merne tehnike, odnosno sve četiri korišćene metode	96
Tabela 4.2	Poređenje karakteristika korišćenih metoda	97

I TEORIJSKI DEO

Uvod

Radioekologija pijaće vode

Radioekologija je grana ekologije koja proučava uticaj radioaktivnog zračenja na živi svet (biocenuzu), što uključuje istraživanje mehanizama translokacije i migracije radionuklida kroz različite ekološke sisteme (atmosfera, zemljište, voda, vazduh) i lanac ishrane. Radioekološka istraživanja uključuju uzorkovanje, eksperimente u prirodi i laboratorijima, razvijanje prediktivskih i simulacionih modela, dozimetriju i dr. (Franić & Franić, 2010).

Radioekologija kao grana ekologije služi se metodama i tehnikama nuklearne fizike pri ispitivanjima radioaktivnosti uzoraka iz prirodnog okruženja. Ti uzorci su najčešće: voda, vazduh, zemljište, biljke, namirnice za ljudsku i životinjsku upotrebu, ostaci biljaka i životinja, građevinski materijal i dr.

Radioekologija se kao zasebna nauka pojavila krajem 19. veka, tj. neposredno nakon što je *Wilhelm Conrad Röntgen*¹ 1895. godine otkrio X-zrake, *Antoine Henri Becquerel*² 1896. godine otkrio fenomen radioaktivnosti, a *Marie Skłodowska Curie*³ 1898. godine identifikovala i opisala prirodne radioaktivne elemente polonijum i radijum. Prva naučna istraživanja vezana uz radioekologiju odnosila su se na disperziju i migraciju prirodnih radionuklida kroz lanac ishrane u životnoj sredini i proučavanje odnosa i uticaja prirodnog jonizujućeg zračenja (engl. *background radiation*) na razvoj živog sveta na Zemlji (Franić & Franić, 2010).

Radioekologija je nauka koja kombinuje druge naučne discipline kao što su: fizika, hemija, matematika, biologija, medicina i sama ekologija, primenjujući koncepte zaštite od ionizujućeg zračenja.

Radioekologija vode za piće ne samo da ima ključnu ulogu u postizanju osnovnih zadataka zaštite od zračenja nego pruža mnogo šire mogućnosti, posebno u današnjim okolnostima kada je sveobuhvatna zaštita životne sredine od svakojakog zagađivanja postala briga ne samo naučnika već i nacionalnih, kao i međunarodnih autoriteta. Nažalost, oslobođanje radioaktivnih materijala u životnu sredinu, pa tako i u reke, mora i okeane, zbog normalnog rada industrijskih postrojenja, medicinskih ustanova i sl. nije moguće sprečiti jer se upotreba najrazličitijih nuklearnih tehnika najuže povezuje s porastom standarda (Franić & Franić, 2010).

¹ *Wilhelm Conrad Röntgen* (1845-1923), nemački fizičar, zaslužan za otkriće X-zračenja (rendgenskog zračenja).

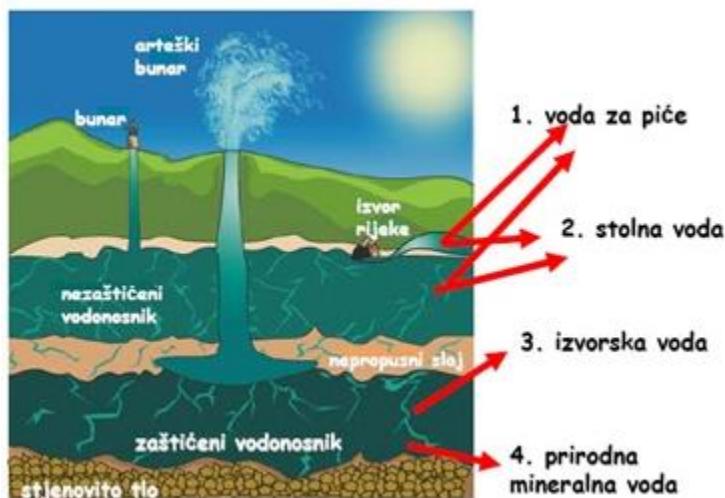
² *Antoine Henri Becquerel* (1852-1908), francuski fizičar, zaslužan za otkriće radioaktivnosti 1896 godine.

³ *Marie Skłodowska Curie* (1867-1934), francuska fizičarka i hemičarka poljskog porekla, bila je pionir radiologije.

Osnovna teza i koncepcija rada

Cilj ovog master rada jeste poređenje nekih od metoda dostupnih za ispitivanje ^{226}Ra u vodi, kao i njihovih minimalnih detektibilnih aktivnosti (MDA). Cilj je takođe i određivanje najpouzdanije, najbrže i najefikasnije metode koja ne zahteva dugo vreme merenja, niti posebnu hemijsku pripremu uzorka, kao što je separacija, filtracija i sl. Rad je posvećen pre svega poređenju rezultata među metodama, a ne samim metodama, uzorkovanju itd. Sva istraživanja vršena su u laboratoriji Katedre za nuklearnu fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Dakle, u ovom radu, akcenat je stavljen na radioekologiju vode za piće. Kako studije pokazuju, pijača voda iz gradskog vodovoda obično ne sadrži prekomernu koncentraciju aktivnosti radionuklida. Voda iz vodovoda je samo jedan od načina vodosnabdevanja stanovništva pijaćom vodom. Seoska područja, često koriste vodu iz bunara i arterških česmi za svakodnevno vodosnabdevanje, kako stoke, tako i za ličnu potrebu. Pošto je ovakva voda u direktnom kontaktu sa litosferom, u njoj se može javiti povećana koncentracija aktivnosti pojedinih radionuklida, što se može ogledati i u povećanoj ukupnoj alfa/beta aktivnosti. Raspored vodenih slojeva u litosferi iz kojih je moguće vodosnabdevanje prikazani su na slici 1.0.



Slika 1.0 Poreklo vode za piće (raspored vodenih slojeva u litosferi)

Sadržaji pojedinačnih radionuklida i njihov doprinos ukupnoj alfa/beta aktivnosti u vodi za piće definisani su zakonskom regulativom Republike Srbije koja je usklađena sa pravilnicima i propisima Evropske Unije.

Rad je podeljen u pet celina (poglavlja). U prva dva poglavlja daju se osnovne koncepcije radioaktivnosti. Opisan je fenomen grupisanja radionuklida u nizove, iz kojih je posebno izdvojen radijum 226 (^{226}Ra) i radon 222 (^{222}Rn) kao njegov direktni potomak. Date su i osnovne postavke sekularne radioaktivne ravnoteže.

Potom, sumarno je dat opis štetnosti jonizujućeg zračenja i njihovih bioloških efekata, sa zaštitom od alfa i beta zračenja. Opšte definicije doza zračenja, kao i doze koje pojedinac može primiti ingestijom vode sa povećanim sadržajem radionuklida takođe su razmatrane. U poglavlju jedan date su i osnovne stavke posebnih pravilnika (podzakonskih akata Republike Srbije) koji uređuju granice sadržaja radionuklida u pijaćoj vodi, sa posbnim osvrtom na ^{226}Ra .

Drugo poglavlje posvećeno je detekciji i merenju ionizujućeg zračenja, sa osnovnim tezama o funkcionisanju poluprovodničkih i scintilacionih detekcionih sistema. Uz njihovo funkcionisanje svakako idu i osnovne činjenice o statističkim varijacijama pri brojanju rezultata, za ove detekcione sisteme. Pošto svaki detekcioni sistem (brojač, spektrometar) ima odgovarajuću graniču detekcije koju u odgovarajućim uslovima može detektovati, tzv. MDA, nametnulo se i ovo pitanje, koje će biti glavna tema u samom eksperimentalnom delu rada za svaku metodu zasebno.

Eksperimentalni rezultati i diskusija dati su u trećem poglavlju. U uvodnom delu trećeg poglavlja biće reči o načinu pripreme uzorka i samim uzorcima i metodama koje se koriste za ispitivanje ^{226}Ra u vodi. Korišćene su četiri metode za ispitivanje radijuma u vodi. Merne tehnike kojima su izvedena merenja su gama spektrometrija, alfa spektrometrija detektorom RAD7, i tečna scintilaciona spektrometrija (LSC) detektorom Quantulus 1220TM. U okviru tečne scintilacije spektrometrije (LSC) razvijene su dve metrode: EPA 913.0 i ASTM D 7283-06. U poglavlju tri, za svaku od navedenih metoda biće prikazani rezultati, poređeni sa referentnim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , njihove korigovane vrednosti optimalnim funkcijama i njihova minimalna detektibilna aktivnost (MDA) .

U poglavlju četiri biće prikazano poređenje dobijenih eksperimentalnih i korigovanih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra za sve četiri metode, kao i njihove minimalne detektibilne aktivnosti (MDA) predstavljanjem rezultata Tabelama i histogramima.

U poglavlju pet se izvode konačni zaključci i daju predlozi za dalja naučna istraživanja, odnosno pravi se trasa daljih izučavanja i shvatanja nedostataka korišćenih mernih tehnika i metoda.

1. Prirodna radioaktivnost

Proces u kojem dolazi do spontane transformacije jezgra kojom prilikom ono menja svoj sastav ili energetsko stanje predstavlja *radioaktivnost*. Sastav jezgra se menja ukoliko ono doživi alfa ili beta raspad. Prilikom alfa raspada dolazi do emisije čestice koja se sastoji od dva protona i dva neutrona, baš kao i jezgro atoma helijuma. Jedan od načina raspada nestabilnih jezgara iz grupe beta emitira je emisija negativne beta čestice koja nije ništa drugo nego običan elektron. I alfa i beta raspad bivaju propraćeni emisijom gama zračenja koje je elektromagnetne prirode. Nakon radioaktivnog raspada stvoreno jezgro može biti u pobuđenom stanju, a na osnovno energetsко stanje najčešće prelazi emisijom gama zračenja. Svakako, najznačajnija činjenica jeste da je radioaktivnost spontani proces i na nju se ne može spoljašnjim faktorima uticati kao što su temperatura, pritisak, vlažnost vazduha i slično (Krmar, 2013).

Uobičajena je terminologija da se jezgro koje se raspada naziva predak, a ono koje nastaje putem radioaktivnog raspada jezgro potomak. Jezgro potomak nastalo alfa raspadom, u odnosu na pretka ima dva protona manje, a maseni broj mu je manji za četiri. Prilikom emisije negativne beta čestice se ne menja maseni broj ali potomak poseduje jedan proton više i jedan neutron manje u odnosu na pretka (Krmar, 2013).

Radioaktivni elementi (radionuklidi) se u prirodi nalaze u vazduhu, vodi i zemljишtu i predstavljaju sastavne delove stena i zemljишta, mora i okeana, građevinskih materijala. Ne postoji mesto na Zemlji gde nema prirodne radioaktivnost. Postoji preko 1500 različitih radionuklida koji se mogu podeliti u tri kategorije:

1. Primordijalni (prvobitni) – od pre nastanka Zemlje;
2. Kosmogeni – nastali kao rezultat interakcije kosmičkih zraka;
3. Veštački – nastali kao rezultat ljudskog delovanja.

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

Zračenje je jedan od načina na koji se prenosi energija. Kada nuklearna zračenja dođu u dodir sa kakvom materijom, ona joj ustupe deo svoje energije, koja može da izmeni fizička, hemijska ili biološka svojstva predmeta ili žive materije. Za nuklearna zračenja kao što je rečeno postoje tri glavna tipa: alfa, beta i gama zraci. Oni se razlikuju pored ostalog i svojom sposobnošću prodiranja kroz materiju; tako su alfa zraci najmanje prodorni, dok su gama zraci najprodorniji.

Ionizujuća zračenja postoje i u prirodi; to su zračenja koja dolaze od prirodnih radioaktivnih materija i iz Kosmosa, kao kosmička zračenja koja obasipaju našu planetu.

Sve radioaktivne materije ispuštaju zrake koje deluju na živi organizam, izazivaju poremećaje, oboljenja pa i smrt. One se razlikuju: materije koje ispuštaju samo alfa i beta zrake koji su lako apsorbovani, kao fosfor 32, sumpor 35, stroncijum 90, talijum 204 itd. i materije koje ispuštaju prirodne gama i rendgenske zrake, kao kobalt 60, natrijum 24, jod 131, zlato 198 i dr. (Damnjanović, 1962).

Alfa zraci prodiru samo u gornje slojeve kože, dok je prodorna moć beta zraka nekoliko milimetara u tkivo. Prema tome ova su zračenja kao spoljni izvor, opasna samo za gornje slojeve tkiva, te je za zaštitu od njih dovoljno primeniti srazmerno tanke slojeve zaštitnog materijala, staklo, pleksiglas, hartiju i slično. Međutim u uslovima unutrašnjeg zračenja, usled guste ionizacije koju izazivaju alfa zraci, oni postaju najopasniji izvor jonizujućih zračenja (Damnjanović, 1962). Alfa čestice se kreću kroz vazduh brzinom od oko 20000 km/s i izazivaju ionizaciju gasa-razlaganje molekula i atoma gasa na nanelektrisane deliće ili jone - pa je stoga razumljiva njihova razorna moć (Kovačević, 1957).

Gama zraci su najprodorniji, te su zato potrebni debeli ili gusti zaštitni slojevi, kao olovo, olovno staklo, gvožđe, beton i sl. Za zaštitu od spoljašnjeg zračenja (kada se izvor nalazi van organizma) vrlo je važno rastojanje od izvora zračenja. Ukoliko je udaljenost veća, utoliko je jačina zračenja manja, odnosno jačina zračenja je obrnuto proporcionalna kvadratu rastojanja.

Naročita opasnost preti od unutrašnjih zračenja (kada se izvor zračenja nalazi u organizmu). To je slučaj kada se radioaktivne materije unesu u organizam jelom, pićem ili udisanjem ili kroz kožu injekcijom ili ranjavanjem. I najmanja količina radioaktivne materije koja dospe u organizam može da izazove najteža oboljenja i smrt. U ovom radu se stavlja akcenat na ^{226}Ra koji je alfa emiter, ako se unese u organizam putem pijaće vode može izazvati opasne posledice pre svega zbog svojih potomaka.

Značajan izvor prirodne radijacije je i kosmičko zračenje. Primarno kosmičko zračenje je galaktičkog i solarnog porekla, a sastoji se nanelektrisanih čestica veoma visoke energije. Do zemljine površine ono veoma retko dospeva pošto nestaje u interakcijama u atmosferi, kojom prilikom se stvara sekundarno zračenje. U gornjim slojevima atmosfere nuklearnim reakcijama kosmičkog zračenja sa jezgrima azota i kiseonika dolazi do stvaranja nekolicine radioaktivnih jezgara, kao što su to ^{14}C i ^{7}Be . Nakon toga dolazi do njihovog ravnomernog raspoređivanja putem atmosferskih transportnih procesa te na taj način i oni daju svoj doprinos ukupnoj prirodnoj radioaktivnosti. U kosmogene radionuklide spadaju i ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{80}Kr , ^{14}C , ^{32}Si , ^{39}Ar , ^{22}Na , ^{35}S , ^{37}Ar , ^{33}P , ^{32}P , ^{38}Mg , ^{24}Na , ^{38}S , ^{31}Si , ^{18}F , ^{39}Cl , ^{38}Cl , ^{34}mCl (Bikit I. , et al., 2012).

Sa porastom nadmorske visine, ali i geografske širine, doza od kosmičkog zračenja raste. Prosečna efektivna godišnja doza za stanovništvo iznosi 0,38 mSv, dok je raspon doza od 0,3 mSv do 2 mSv (UNSCEAR, 2010) . Letom avionom primi se veća doza zračenja nego na površini Zemlje.

1.1 Zakon radioaktivnog raspada

Ježgro predstavlja kvantno-mehanički sistem, pa je prema tome nuklearni (radioaktivni) raspad spontana transformacija. Nuklearni raspadi podležu kvantnoj statistici. Egzaktno vreme kada će se posmatrano radioaktivno ježgro raspasti se ne može predvideti, ali za veliki broj nestabilnih ježgara, njihov statistički zakon raspada je dobro poznat-eksponencijalni zakon raspada (Mrđa & Bikit, 2016).

Ustanovljeno je još u prvim trenucima da se na raspad ne može uticati spoljašnjim faktorima. To znači da je verovatnoća raspada određena isključivo prirodnom procesu koji se u njemu odvijaju i može se za dati izotop smatrati konstantom. Iz tog razloga uvedena je veličina koja se naziva konstanta radioaktivnog raspada, a predstavlja verovatnoću da se neko ježgro raspade u jedinici vremena. Precizna merenja su pokazala da je konstanta radioaktivnog raspada karakteristika svakog pojedinačnog radiozotopa, a eksperimentalno se može odrediti kao što je dato u (Krmar, 2013):

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

gde je ΔN broj ježgara koji se raspao u vremenskom intervalu Δt , a N je ukupan broj radioaktivnih ježgara u posmatranom uzorku u početnom trenutku.

Dakle numerička vrednost od λ izražava statističku verovatnoću raspada svakog pojedinačnog atoma u grupi identičnih atoma u jedinici vremena.

Kada se uporede neke vrednosti karakteristične za radioaktivne raspade, kao što su na primer tip emitovanog zračenja, konstanta radioaktivnog raspada, način na koji se deli energija između produkata raspada itd., može se zaključiti da je svaki radioaktivni raspad potpuno jedinstven proces. Da bi se radioaktivni raspad kao pojava bolje opisao, neophodno je bilo da se u toj raznolikosti pronađe nešto opšte i zajedničko za sve raspade, čuveni eksponencijalni zakon radioaktivnog raspada.

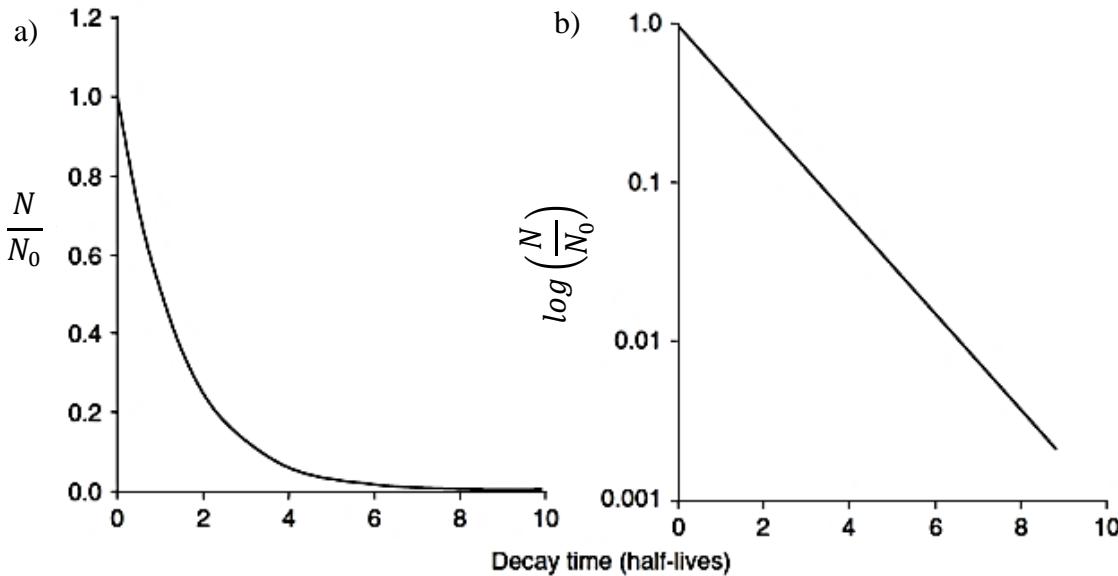
Broj ježgara koji se raspada u vremenu dt je dat preko opadanja u broju prisutnih ježgara, dN . Ovo smanjenje broja ježgara je proporcionalno broju prisutnih ježgara N i vremenskom intervalu dt :

$$-dN = \lambda N dt \quad 1.2$$

gde je λ konstanta proporcionalnosti odnosno gore definisana (relacija 1.1) konstanta radioaktivnog raspada. Negativan predznak pridodat čitavoj relaciji govori o tome da se krajnji broj ježgara smanjuje u odnosu na početni, i to mu je jedini fizički smisao. Nakon integracije relacije 1.2 dobija se:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad 1.3$$

pri čemu je N_0 početni broj jezgara, odnosno u trenutku $t=0$, dok je N broj preostalih neraspadnutih jezgara nakon proteklog vremena t . Ovo je *eksponencijalni zakon radioaktivnog raspada* koji reprezentuje činjenicu da broj nestabilnih jezgara opada eksponencijalno sa vremenom. Grafik zavisnosti N u funkciji vremena t prikaz je na slici 1.1a.



Slika 1.1 Grafik zavisnosti N/N_0 u funkciji vremena t :

a) linearna skala, b) semilogaritamska skala

Period poluraspada je sledeća veličina koju je potrebno uvesti. Najčešće se obeležava sa $T_{1/2}$ i definiše se kao vreme koje je potrebno da se početni broj jezgara smanji na polovinu. Dakle:

$$\frac{N}{N_0} = \frac{1}{2} \quad 1.4$$

što primenjeno na relaciju 1.3 daje:

$$\frac{1}{2} = e^{-\lambda T_{1/2}} \quad 1.5$$

Logaritmovanjem se dobija izraz za period poluraspada koji izgleda:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0,693}{\lambda} \quad 1.6$$

Period poluraspada je jedna od nekoliko osnovnih veličina koje moraju biti poznate za svaki radioaktivni element. Konkretno za ^{226}Ra period poluraspada iznosi 1620 godina ili $5,11 \cdot 10^{10}$ sekundi (Hoaga & Korff, 1962).

Čest je slučaj da se raspada nekog nestabilnog nuklida predstavlja u logaritamskoj razmeri pošto se tada vremenska zavisnost broja neraspadnutih jezgara veoma jednostavno može predstaviti pravom linijom (slika 1.1b). Logaritmovanjem jednačine 1.3 dobija se:

$$\ln N = \ln N_0 - \lambda t \quad 1.7$$

što ustvari predstavlja jednačinu prave. Iz gornje relacije se može videti da konstanta radioaktivnog raspada u stvari predstavlja koeficijent pravca prave linije kojom se u logaritamskoj skali opisuje radioaktivni raspad.

1.2 Aktivnost

Sledeća veličina koja će biti definisana je aktivnost radioaktivnog izvora, A , kao broj raspada nestabilnih jezgara u jedinici vremena ($-dN/dt$) (Mrđa & Bikit, 2016). Tada je:

$$A \equiv -\frac{dN}{dt} = \lambda N(t) = \lambda N_0 e^{-\lambda t} = A_0 e^{-\lambda t} \quad 1.8$$

gde je A_0 aktivnost u početnom trenutku, dok je A preostala aktivnost nakon vremena t . Prema tome, i aktivnost podleže eksponencijalnom zakonu, tj. smanjuje se eksponencijalno sa vremenom. Dakle, aktivnost predstavlja produkt konstante raspada i broja neraspadnutih jezgara u posmatranom uzorku: $\lambda N(t)$. U slučaju radionuklida koji se može raspadati putem više modova raspada, parcijalne aktivnosti $\lambda_1 N(t)$, $\lambda_2 N(t)$,... takođe opadaju kao $e^{-\lambda t}$, a ne kao $e^{-\lambda_1 t}$, $e^{-\lambda_2 t}$,..., zbog toga što je:

$$\frac{A_1}{A_{1,0}} = \frac{\lambda_1 N}{\lambda_1 N_0} = \frac{N}{N_0} = e^{-\lambda t} \Rightarrow A_1 = A_{1,0} e^{-\lambda t} \quad 1.9$$

gde je $A_{1,0}$ početna parcijalna aktivnost, a A_1 parcijalna aktivnost nakon vremena t (Mrđa & Bikit, 2016).

Jedinica za aktivnost je 1 *becerel* [Bq], što odgovara raspadu jednog jezgra radioaktivnog nuklida u jednoj sekundi.

Uobičajeno je i korišćenje vanskemske jedinice (stare jedinice koja više nije u upotrebi) za aktivnost a to je 1 *kiri* (Ci), čija je vrednost $3.7 \cdot 10^{10}$ Bq, a koja odgovara aktivnosti jednog grama ^{226}Ra .

Veoma je često potrebno poznavati aktivnost nekog radioaktivnog uzorka. Iz jednačine 1.8 može se videti da se aktivnost takođe može izraziti, ako je poznata količina radionuklida u nekom uzorku, broj jezgara ili njegova masa kao:

$$A = \lambda N = \lambda \frac{m \cdot N_{AV}}{M} \quad 1.10$$

gde je m ukupna masa nuklida u uzorku čija se aktivnost treba odrediti, N_{AV} je Avogadrovo broj, a M je molarna masa elementa ili jedinjenja koje sadrži nestabilna jezgra.

Ukoliko nije poznata količina nestabilnog nuklida u uzorku, moguće je do njegove aktivnosti doći merenjem. Detektor koji radi u diferencijalnom režimu rada, može da zabeleži ukupan broj alfa ili beta

čestica, kao i fotona koji stignu do njegove aktivne zapremine u određenom vremenskom intervalu. Ako se izvor nepoznate aktivnosti postavi ispred jednog takvog mernog uređaja, u vremenskom interval Δt biće detektovano N_d čestica ili fotona (Krmr, 2013).

Uz prepostavku da se zračenje emituje ravnomerno u svim pravcima, ka detektoru će biti usmeren samo jedan deo emitovanih čestica. Ovaj deo se prema ukupnom broju emitovanih čestica ili fotona odnosi kao i prostorni ugao kogaži zauzima sam detektor pema ukupnom prostornom uglu od 4π steradijana. Aktivnost se na osnovu merenja može odrediti kao:

$$A = \frac{N_d}{\Delta\Omega \cdot \varepsilon \cdot \Delta t} \quad 1.11$$

gde je $\Delta\Omega$ deo ukupnog prostornog ugla pod kojim se vidi detektor sa mesta gde se nalazi izvor, a ε je apsolutna efikasnost mernog uređaja. Gornja relacija opisuje najjednostavniji slučaj tačkastog izvora kome su dimenzije zanemarljivo male u odnosu na rastojanje od detektora. Takođe je prepostavljeno da u samom izvoru na dolazi do samoapropscije posmatranog zračenja (Krmr, 2013).

Za opisivanje radioaktivnosti takođe se koriste specifična aktivnost i koncentracija aktivnosti. **Specifična aktivnost** je aktivnost jedinične mase i može se iskazati kao:

$$a = \frac{dA}{dm}, \quad [a] = \frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \quad 1.12$$

Koncentracija aktivnosti predstavlja aktivnost jediničnog volumena radioaktivne supstance i može se izraziti kao:

$$C = \frac{dA}{dV}, \quad [C] = \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \quad 1.13$$

U eksperimentalnom delu rada posebno se pridaje značaj veličini (koncentraciji aktivnosti) definisanom relacijom 1.13 datu u jedinicama tri reda veličine manjom, $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

1.3 Radioaktivni nizovi

Većina radionuklida koji postoje na Zemlji (rednog broj $Z > 82$, masenog $A > 206$) mogu se grupisati u tri radioaktivna niza. To su *uranijum-radijumska*, *uranijum-aktinijumska* i *torijumska* niz. Od izotopa praroditelja ^{235}U , ^{238}U i ^{232}Th koji se zbog svog dugog perioda poluraspada još uvek nalaze u prirodi, sukcesivnim radioaktivnim raspadima nastaju radioaktivni elementi – potomci. Poslednji član niza je jedan od stabilnih izotopa olova (svaki od ova tri radioaktivna niza se sukcesivnim transformacijama raspada preko alfa i beta raspada do jednog od stabilnih izotopa olova). Osim ova tri, u laboratorijskim uslovima, je putem nuklearnih reakcija stvoren i četvrti, neptunijumska niz. Osnovni procesi transformacije jezgara kod ovih

nizova su alfa i beta raspad, praćeni emisijom gama zračenja. Osnovne karakteristike tri najznačajnija radioaktivna niza, date su u Tabeli 1.1 (Bikit I. , et al., 2012).

Kao što je gore navedeno, a što se može videte i u Tabeli 1.1 svaki od ova tri niza se završava nekim stabilnim izotopom olova.

Tabela 1.1 Neke od osnovnih karakteristika radioaktivnih nizova

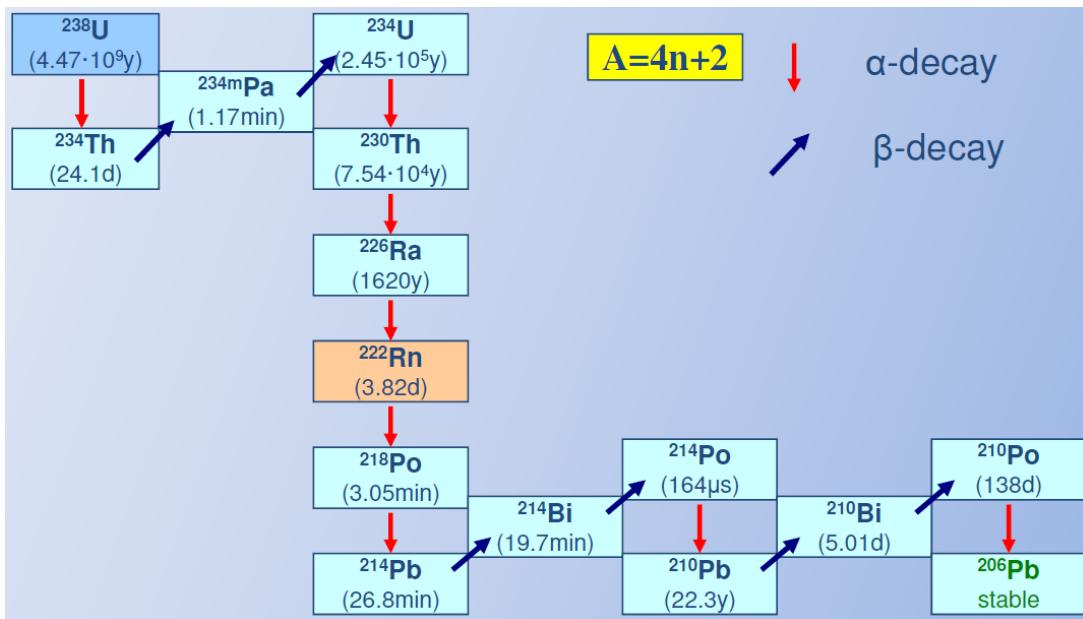
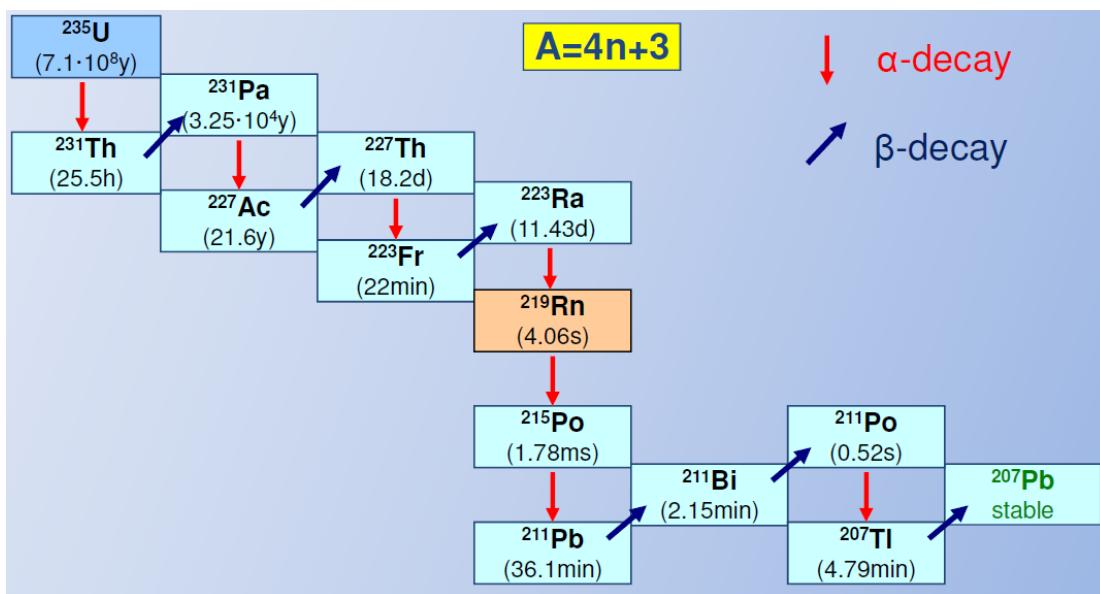
Naziv niza	Polazno jezgro	Period poluraspada (god.)	Krajnji član
<i>torijumov</i>	^{232}Th	$1,4 \cdot 10^{10}$	^{208}Pb
<i>uranijum-radijumov</i>	^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$	^{206}Pb
<i>uranijum-aktinijumov</i>	^{235}U	$7,2 \cdot 10^8$	^{207}Pb

Radioizotopi ^{232}Th , ^{238}U i ^{235}U imaju ekstremno duge periode poluraspada koji su nekoliko redova veličine duži od perioda poluraspada onih njihovih potomaka sa najdužim periodima poluraspada. To za posledicu ima uspostavljanje sekularne radioaktivne ravnoteže pri kojoj je aktivnost svakog potomka jednaka aktivnosti rodonačelnika niza. Međutim, neki potomak može da nastane kao rezultat dezintegracije pretka koji se raspada i nekim drugim kanalom raspada. Aktivnost nastalog potomka je tada konstantan deo aktivnosti rodonačelnika niza i zavisi od verovatnoće raspada njegovog pretka po kanalu raspada u kojem posmatrani potomak nastaje (Bikit I. , et al., 2012).

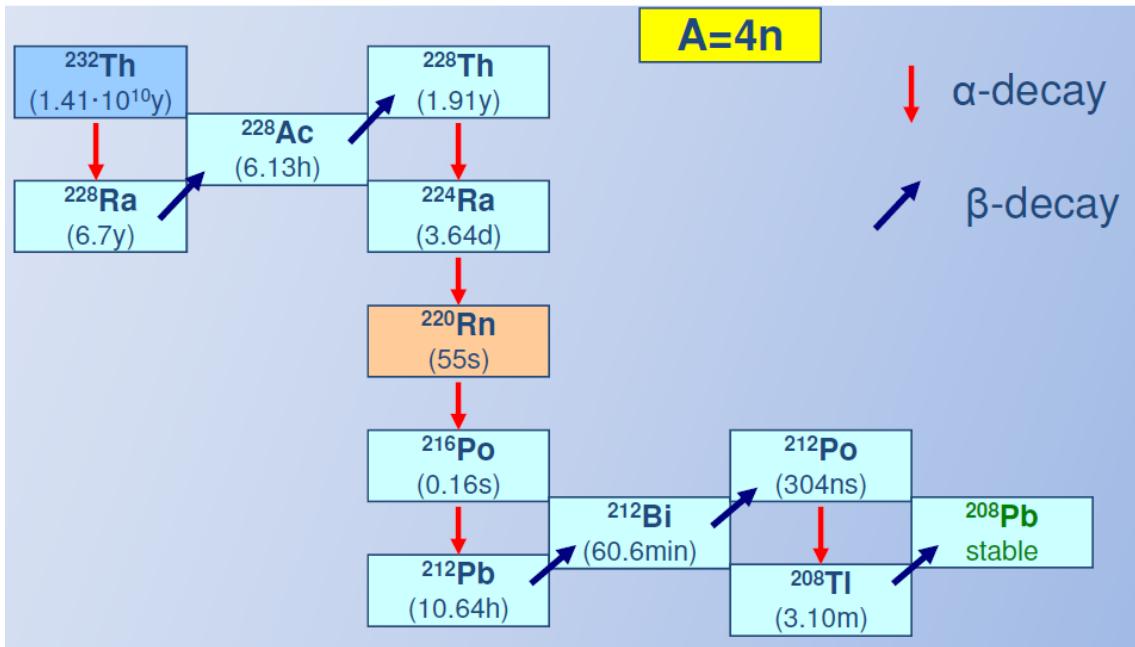
Svakako jedan od važnih radionuklida koji ne pripada ni jednom od navedena tri niza je i ^{40}K ($T_{1/2} = 1.28 \cdot 10^9$ god), najvažniji prirodni radionuklid van nizova. Veoma je značajan jer ga ima dosta u pojedinim namirnicama koje čovek svakodnevno unosi u organizam, te prosečan čovek unese hranom oko 44000 Bq ^{40}K godišnje (Čonkić, 1997).

Ne treba zaboraviti i na postojanje i četvrtog radioaktivnog niza tzv. neptunskog. Neptun ima relativno kratak život, ali je najduže živeći član tog niza. Krajnji član neptunskog niza je ^{209}Bi (Burcham, 1974).

Na slikama 1.2, 1.3 i 1.4 prikazana su sva tri radioaktivna niza sa članovima i njihovim periodima poluraspada. Crvene strelice na slikama govore o tome da se sukcesivni prelaz sa jednog na drugog člana odvija mehanizmom alfa raspada, dok plava strelica ukazuje na mehanizam beta raspada. Svi plavoobojeni radionuklidi su u čvrstom stanju dok je jedini roze obojeni u gasovitom stanju radon, odnosno sva tri njegova izotopa i ^{222}Rn , ^{220}Rn i ^{219}Rn . Radon je inertan, plemeniti gas, a svi njegovi potomci koji mogu nastati su u čvrstom agregatnom stanju.

Slika 1.2 Radioaktivni niz ^{238}U Slika 1.3 Radioaktivni niz ^{235}U

Prvi od tri niza – niz urana – počinje izotopom ^{238}U a završava se stabilnim ^{206}Pb . Maseni brojevi svih članova ovog niza predstavljeni su formulom $(4n+2)$, gde je n neki od celih brojeva između 51 i 59. Posle 14 uzastopnih raspada, konačan proizvod je stabilni izotop ^{206}Pb , (slika 1.2). Danas se u litosferi uran javlja u izotopskom sastavu ^{238}U (99.275%), ^{235}U (0.720%) i ^{234}U (0.005%). Mali procenat ^{235}U posledica je

Slika 1.4 Radioaktivni niz ^{232}Th

njegovog perioda poluraspada od $7.04 \cdot 10^8$ godina, što ukazuje na to da ga je na ranoj Zemlji bilo oko 40 puta više, te se u prirodi često odigravala spontana fisijska (Bikit I. , et al., 2012). Smanjen sadržaj ^{235}U povećava samo osiromašenost rude i ovakav uranijum se koristi za proizvodnju nuklearnog naoružanja. Torijumov radioaktivni niz počinje izotopom ^{232}Th , a maseni broj svih članova je 4n. Posle 10 uzastopnih raspada, konačni proizvod je ^{208}Pb (slika 1.4). Konačno, radioaktivni niz izotopa sa masenim brojem 4n + 3 počinje izotopom ^{235}U , a posle 11 uzastopnih raspada, dobija se stabilan izotop ^{207}Pb (slika 1.2) (BIPM, 2004) (BIPM, 2006) (BIPM, 2008) (BIPM, 2010) (BIPM, 2011) (BIPM, 2013).

1.3.1 Sekularna radioaktivna ravnoteža

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

Početni problem se postavlja polazeći od sledećeg slučaja:

$$N_1 \xrightarrow{\lambda_1} N_2 \xrightarrow{\lambda_2} N_3 \quad 1.14$$

Transformacija 1.14 bi se mogla opisati i rečima i glasila bi: N_1 se raspada u N_2 , a ova se vrsta atoma raspada u N_3 koji je stabilan član niza. U ovom nizu se N_1 zove predak, a N_2 potomak, pri čemu su λ_1 i λ_2

konstante radioaktivnog raspada pretka odnosno potomka. Ovakav se radioaktivni proces može opisati sa tri diferencijalne jednačine koje imaju oblike:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad 1.15$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad 1.16$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 \quad 1.17$$

Rešavanjem jednačine 1.16 dobija se broj atoma drugog člana u radioaktivnom nizu. Treba napomenuti da je broj atoma prvog niza N_1 dat jednačinom eksponencijalnog oblika, odnosno zakonom radiaktivnog raspada koji glasi:

$$N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad 1.18$$

uvrštavanjem relacije 1.18 u 1.16 dobija se:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2 \quad 1.19$$

množenje izraza 1.19 sa $e^{\lambda_2 t}$ i integracijom dobija se izraz:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} + C e^{-\lambda_2 t} \quad 1.20$$

gde je C konstanta integracije. Ona se određuje iz početnih uslova u trenutku $t=0$ bilo je N_{02} atoma potomka pa se iz toga dobija da konstanta integraije ima vrednost:

$$C = N_{02} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} \quad 1.21$$

Ako se sada 1.21 uvrsti u 1.20 dobija se:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{02} e^{-\lambda_2 t} \quad 1.22$$

Poslednja jednačina daje zavisnost broja atoma potomka nastalih radioaktivnim raspadom njegovog pretka N_1 od vremena.

Ako se vrednost N_2 uvrsti u relaciju 1.17 i ova reši, dobija se broj atoma poslednjeg člana niza, koji je stabilan. Ovo rešenje ima oblik:

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

Sređivanjem relacije i njenom integracijom dobija se rešenje za N_3 koje ima oblik:

$$N_3 = \left\{ \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} - N_{03} \right\} e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} + D \quad 1.23$$

gde je D integraciona konstanta. Ona se određuje iz početnih uslova kao malo pre. Neka je u trenutku $t=0$, bilo N_{03} atoma poslednjeg člana niza. Tada se primenom početnih uslova dobija vrednost konstante D koja iznosi:

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

Uvrštavanjem D u relaciju 1.23 dobija se vremenska funkcija sledećeg oblika:

$$N_3(t) = N_{03} + N_{02}(1 - e^{-\lambda_2 t}) + N_{01} \left(1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} \right) \quad 1.24$$

u praksi se koristi sledeći početni uslov $N_{01} \neq 0$, a $N_{02} = N_{03} = 0$ relacije 1.22 i 1.24 mogu napisati kao:

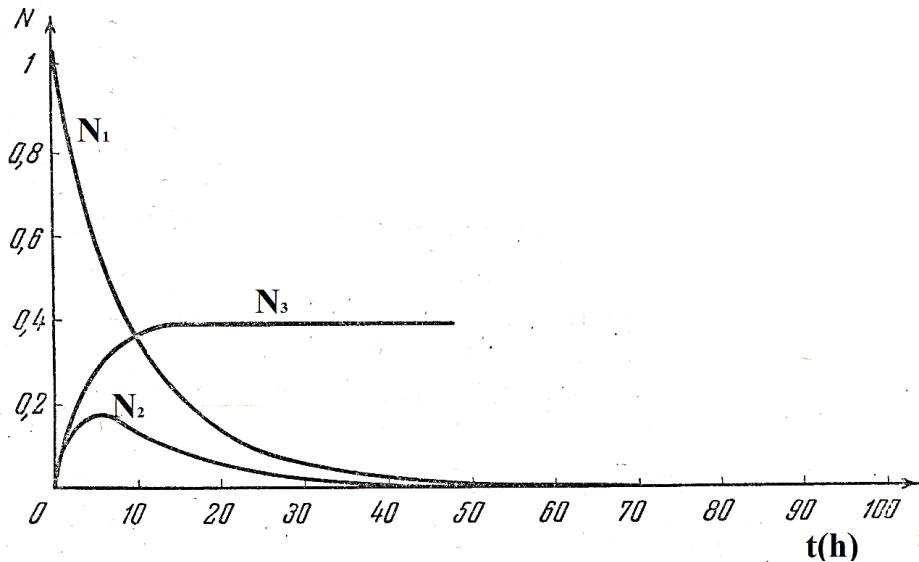
$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} (1 - e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t}) \quad 1.25$$

i

$$N_3(t) = N_{01} \left(1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} \right) \quad 1.26$$

Rešenja ove tri diferencijalne jednačine predstavljena su grafički na slici 1.5. Ovaj problem u početku je postavljen sa radioaktivnim nizom od tri člana, čitava problematika se može dati i za niz od n članova, samo što se sistem dosta usložnjava i komplikuje rešavanje samih diferencijalnih jednačina.

Direktno objašnjenje sekularne radioaktivne ravnoteže vezuje se za uslov $\frac{dN}{dt} = 0$. Primenom ovog uslova na članova niza 1.15, 1.16, 1.17 (i tako i za sve više članove od trećeg) pokazuje se da se broj atoma bilo kog člana niza ne menja. To je, u stvari, onaj trenutak vremena kada se raspade onoliko atoma koliko se stvori.



Slika 1.5 Radioaktivni niz od tri člana. U početku prisutan je samo predak; potomak ima period poluraspada $T_2=5\text{h}$; treći član je stabilan.

Strogo matematički, ovi uslovi u potpunosti nikada nisu ispunjeni. Uvođenjem $\lambda=0$, podrazumeva se neaktivni materijal, pa govoriti o radioaktivnim ravnotežama tada nema smisla. Međutim, stanja bliska radioaktivnim ravnotežama su moguća. Recimo, to je slučaj kada pored poluraspada pretka $T_{1/2}$ teži

beskonačnosti, ili je znatno veći u odnosu na period poluraspada potomka. Takav je primer ^{238}U . Njegov period poluraspada iznosi $T_{1/2}(^{238}\text{U})=4,5 \cdot 10^9$ godina, a period poluraspada njegovog potomka je kraći, te se N_1 može smatrati konstantnim, a $\lambda = \frac{0,693}{T_{1/2}} \rightarrow 0$ čime je, $\frac{dN_2}{dt} = 0$, uslov za radioaktivnu ravnotežu ispunjen.

Za ovaj tip radioaktivne ravnoteže može se napisati sledeći uslov:

$$\lambda_1 \ll \lambda_2 \quad 1.27$$

tada je

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_n N_n \quad 1.28$$

Ili

$$\frac{N_1}{t_{1/2}^1} = \frac{N_2}{t_{1/2}^2} = \dots = \frac{N_n}{t_{1/2}^n} \quad 1.29$$

Ove se relacije mogu primeniti za određivanje vremena odnosno perioda poluraspada pretka, kada se period poluraspada potomka zna. Ako je period poluraspada pretka veoma dug, drugih mogućnosti za određivanje sem radioaktivne ravnoteže nema. U slučaju da je poznat odnos broja atoma između urana i radijuma; on iznosi $\frac{N(^{238}\text{U})}{N(^{226}\text{Ra})} = 2,8 \cdot 10^6$, a period poluraspada radijuma kako je navedeno ranije iznosi $T_{1/2}(^{226}\text{Ra})=1620$ godina. Na osnovu ovih podataka period poluraspada urana je određen i iznosi $4,5 \cdot 10^9$ godina. Ovakav tip ravnoteže naziva se **sekularna ili trajna ravnozeža** (Marinkov, 2010). Ovaj tip ravnoteže će biti korišćen u daljem radu za određivanje aktivnosti ^{226}Ra .

Korišćenjem jednačine 1.25, kao i uslova sekularne radioaktivne ravnoteže 1.27, može se napisati izraz za aktivnost potomka koji glasi:

$$A = \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad 1.30$$

Ova jednačina predstavlja aktivnost potomka u funkciji vremena. Apsolutna aktivnost, međutim, jednak je sumi aktivnosti pretka i potomka i može se izraziti na sledeći način:

$$A_{tot} = \lambda_1 N_{01} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (2 - e^{-\lambda_2 t}) \quad 1.31$$

Prema 1.29, vidi se da aktivnost potomka raste sa vremenom. Posle nekoliko perioda poluraspada potomka (6-7), njegova će se aktivnost izjednačiti sa aktivnošću pretka. Apsolutna aktivnost se uvećava dva puta, što se vidi iz relacije 1.30. Uspostavljanje ovakve radioaktivne ravnoteže dato je na slici 1.6a pod a) i 1.6b.

Drugi tip radioaktivne ravnoteže sledi iz uslova:

$$\lambda_1 < \lambda_2 \quad 1.32$$

tj. kada konstanta raspada λ_2 nije mnogo veća od konstante λ_1 , ali se znatno razlikuju. To je slučaj kada je period puluraspada pretka veći od perioda poluraspada, odnosno kada je $T_{1/2}^1 > T_{1/2}^2$. U tom slučaju je

$$e^{-\lambda_2 t} < e^{-\lambda_1 t} \quad 1.33$$

pa se član $e^{-\lambda_2 t}$ u relaciji 1.25 može zanemariti. Pod ovim uslovima broj atoma potomka iznosi:

$$N_2 \simeq \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad 1.34$$

Prema relaciji 1.32 kada je radioaktivna ravnoteža jedanput uspostavljena, apsolutna aktivnost opada sa periodom poluraspada pretka (Marinkov, 2010).

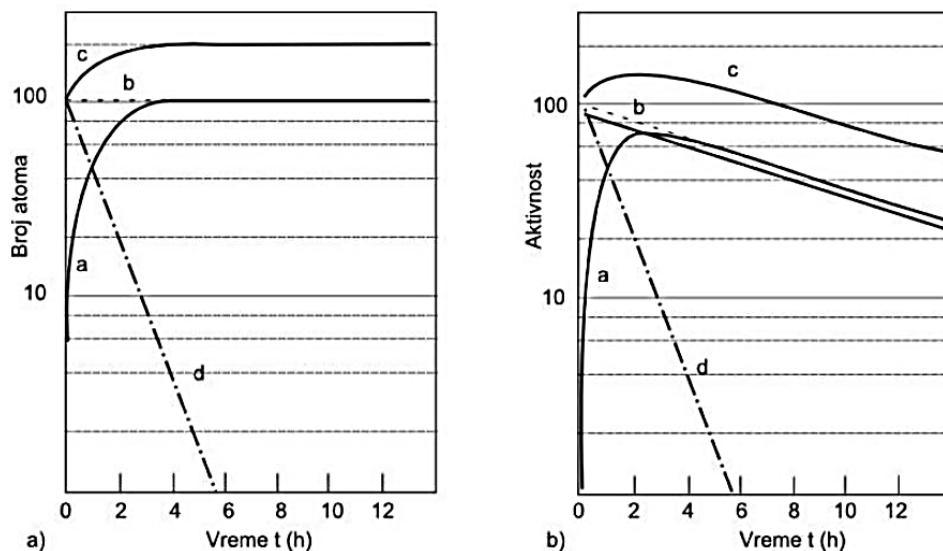
Pošto je $N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t}$, odnos broja atoma pretka i potomka dat je relacijom:

$$\frac{N_2}{N_1} \simeq \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}$$

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

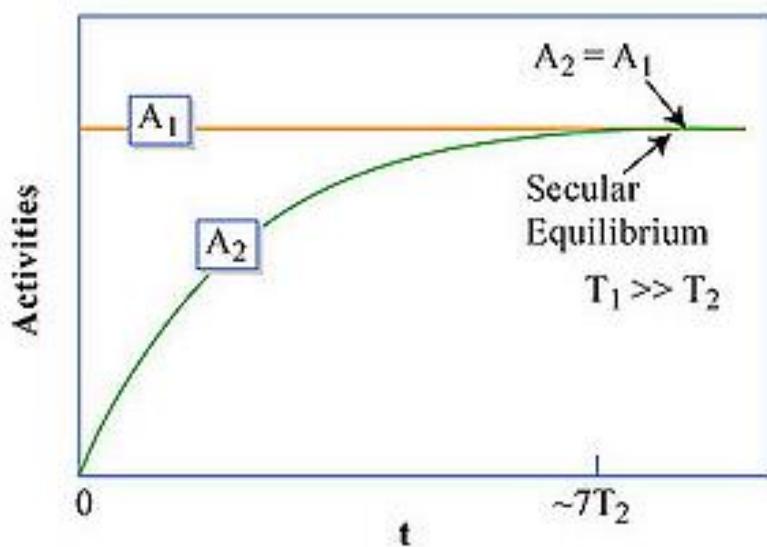
$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad 1.35$$

Ovaj tip ravnoteže naziva se **tranzitna ili prelazna ravnoteža** i prikazana je na slici 1.6a pod b).



Slika 1.6a Trajna i prelazna ravnoteža (Marinkov, 2010):

- a) a - Narastajuća aktivnost potomka;
- b - Aktivnost pretka ($T \rightarrow \infty$);
- c - Totalna aktivnost;
- d - Raspad potomka b)
- a - Narastajuća aktivnost potomka;
- b - Aktivnost pretka ($T = 8.0 \text{ h}$);
- c - Totalna aktivnost;
- d - Raspad potomka;
- e - Totalna aktivnost potomka u frakcijama pretka i potomka



1.6b Opšti princip nastupanja sekularne (trajne) radioaktivne ravnoteže, za slučaj $T_1 \gg T_2$, gde ravnoteža nastupa nakon ~ 7 perioda puluraspada direktnog potomka

1.4 Radijum ^{226}Ra

Radijum je zemnoalkalni element. Svi njegovi izotopi su nestabilni, a ima ih 25 masenih brojeva u rasponu 213 do 230. Najstabilniji je radijum masenog broja 226 sa periodom poluraspada 1620 godina.

Uranijum i radijum se pojavljuju u litosferi i hidrosferi u različitim geološkim objektima: stenama, rudama, zemljištu, kao i u podzemnim i površinskim vodama. U najvećim koncentracijama se pojavljuju u rudama, u sopstvenim rudnim ležištima ili pak kao primese u rudama fosfata, olova i cinka i drugih sirovina; u stenama se značajno koncentrišu, zbog svog geochemijskog karaktera, u kiselim magmatskim stenama, škriljcima i glincima. Sadržaj ovog radionuklida zemaljskog porekla na različitim geološkim strukturama terena u Srbiji razlikuje se oko 10 puta. Najniže vrednosti su na terenima serpentina, a najviše na terenima granita (Lazarev, 2014).

^{226}Ra je prirodni radioaktivni izotop iz ^{238}U serije raspada (niza). Zemlja i voda kao delovi životne sredine često zahtevaju analizu ^{226}Ra u prirodnim vodama zbog zdravstvenih problema kojima populacija može biti izložena. Povećana koncentracija ovog radionuklida može ukazivati i na dešavanje različitih geochemijskih procesa. Merenje radijuma u vodi je postalo pitanje od velikog značaja zbog činjenice da je to jedan od najopasnijih elemenata ako je reč o unutrašnjoj radijaciji, tako da je uobičajena je praksa minitoringa ovog radionuklida u podzemnim vodama SAD-a i Evrope. (L'Annunziata, 1998).

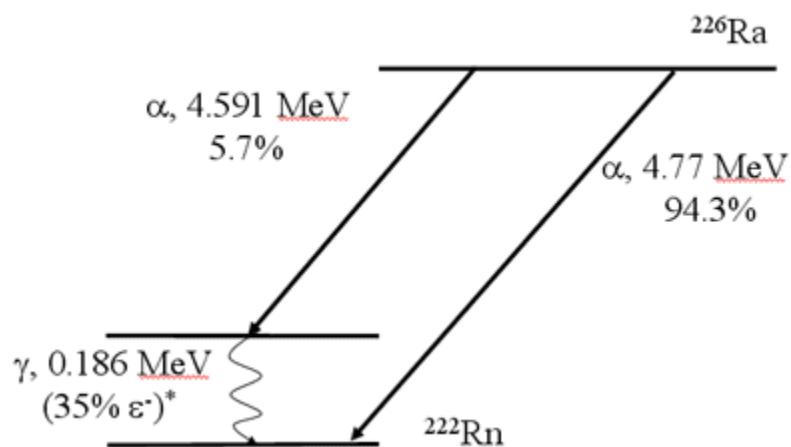
Kako se može videti u radu (Todorović N. , et al., 2017) pojedine stene mogu imati prekomernu koncentraciju aktivnosti radijuma ^{226}Ra , što je potencijalna opasnost i za eshalaciju radona ^{222}Rn u samoj vodi kojom su te stene okružene u litosferi (radon je direktni potomak radijuma što je prikazano na slici 1.7) ali i u prostorijama u kojima borave ljudi, ako se te stene koriste u građevinarstvu. Pošto stene mogu imati povišenu koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra , voda sa kojom su zajedno u litosferi predstavlja potencijalnu opasnost za populaciju, jer može biti primljena velika godišnja doza zračenja njenom konzumacijom.

Radijum 226 pripada grupi prirodnih radionuklida i zbog svoje osobine da se deponuje u kostima i mokraćnoj bešici ima značajnu ulogu u ozračivanju ljudskog organizma. Kontaminacije ljudskog organizma radijumom 226 u životnoj sredini vrši se unošenjem ovog radionuklida preko hrane i pijaće vode (Konjević, Vukotić, & Radovanović, 1979).

Mnogi izvori vode za piće, sadrže male količine ^{226}Ra . Do sada su urađene mnogobrojne studije da bi se pokazalo da li su regioni sa povišenim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra u vodama za piće više opasne po zdravlje stanovništva (BEIR IV, 1988). Opštepoznato je da koncentracija radijuma 226 u vodi raste sa pocećanjem dubine samog izvorišta. Voda iz vodovoda obično ne sadrži povećanu koncentraciju ovog radionuklida. Ako se prekorače zakonske granice koje su regulativama preporučeni, o tome treba blagovremeno obavestiti javnost o potencijalnom riziku prilikom konzumiranja takve vode.

Slika 1.7 Šema raspada ^{226}Ra

Mnogi postupci za određivanje aktivnosti ^{226}Ra u vodi uključuju tečno Scintilaciono brojanje (LSC) potomka ^{222}Rn ili samostalno ili zajedno sa svojim potomcima. Stoga, svako merenje ^{226}Ra je relevantno za ^{222}Rn . Tipičan metod za analizu ^{226}Ra u vodi podrazumeva uspostavljanje sekularne radioaktivne ravnoteže sa radom. To podrazumeva dobro upakivanje uzorka da radon ne bi mogao pobeti jer je gas (L'Annunziata, 1998). Za nastupanje trajne radioaktivne ravnoteže između radijuma i radona potrebno je 6-7 perioda poluraspada radona, što iznosi oko mesec dana. Radioaktivna ravnoteža radona sa njegovim potomcima traje oko 3 sata (posle ova 3 sata može se u narednih mesec dana pratiti postizanje sekularne radioaktivne ravnoteže što će i biti prikazano u eksperimentalnom delu rada).

Slika 1.8 Kanali raspada ^{226}Ra

Na slici 1.8 data je šema raspada ^{226}Ra po kanalima koji je i alfa i gama emiter. Dakle, ^{226}Ra se može odrediti direktno iz gama linije na 186,25 keV, ukoliko se obezbedi dvostruki fotopik na toj energiji razdvojen

na komponentu koja pripada ^{235}U 185,72 keV. Vidi se da je verovatnoća emisije alfa čestice 94,3%, dok je sama emisija gama linije dosta niža (L'Annunziata, 1998).

^{226}Ra se može odrediti indirektno, iz svojih potomaka, pod pretpostavkom postojanja sekularne radioaktivne ravnoteže i to iz:

- ^{214}Bi (609.32keV, 1120.28keV i 1764.51keV)
- ^{214}Pb (295.22keV i 351.99keV⁴)

Određivanje radijuma iz potomaka ima dosta svojih prednosti, ali i mana: velike su verovatnoće za emisiju, nema potrebe da se rade korekcije na samoapsorpciju, nisu neophodni specijalni detektori (mogu se koristiti konvencionalni HPGe poluprovodnički detektori). Mogu se javiti ozbiljni problemi oko True koincidencija posebno kod ^{214}Bi . Mogu se javiti fluktuacije backgruound-a usled sadržaja indoor radoona. Najvažnije što posebno treba naglasiti jeste da se na ovaj način radijum određuje kao otežana srednja vrednost (L'Annunziata, 1998).

1.5 Radon ^{222}Rn

Radon (Rn) je prirodan radioaktivni inertan gas bez boje mirisa i ukusa (u periodnom sistemu elemenata smešten u plemenite gasove), čija je gustina oko sedam i po puta veća od gustine vazduha. Kao gas radon je veoma mobilan, a kako je rastvorljiv u vodi, moguće su značajne koncentracije radona u atmosferi, vodi i zemljištu. Radon ima dva istaknuta izotopa ^{222}Rn i ^{220}Rn (toron). Atomski broj im je 86 . Period poluraspada radona ^{222}Rn iznosi 3,825 dana, dok radona ^{220}Rn svega 56 sekundi. Zbog malog perioda poluraspada ^{220}Rn se ne smatra radiološki značajnim izotopom. Konstanta radioaktivnog raspada ^{222}Rn iznosi $2,1 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. Kada se kaže radon, uglavnom se misli se na izotop ^{222}Rn (Shapiro, 2002). Posebna pažnja u radu biće posvećena radonu ^{222}Rn jer će preko njega biti određivana koncentracija aktivnosti ^{226}Ra .

Prosečna doza prirodnog pozadinskog zračenja uglavnom zavisi od geoloških faktora, rudnika, količine radijuma i radona u zalihamu vode. Visoke količine radona povezuju se sa granitnim vulkanskim stenama, kvarcnim stenama, fosfatnim zalihamama i nekim peščanim plažama koje sadrže visoke količine urana i torijuma, čijim raspadom nastaje radon. Koncentracija radijuma 226 u fosfatnim rudama je oko $40 \text{ pCi} \cdot \text{g}^{-1}$, pa ruda koja je blizu površine uzrokuje vrlo visoke koncentracije radona. Glavni izvor radona 222 u atmosferi (najmanje 80 %) su emisije iz stenovitih formacija blizu Zemljine površine koje su proizvod raspada urana 238, preko radijuma 226, do radona 222 (Lazarev, 2014).

⁴ na ovim energijama Tru koincidencije nisu značajan efekat.

Radon je drugi najvažniji uzročnik karcionoma pluća kod čoveka, posle pušenja. Radon je plemeniti gas, koji nastaje radioaktivnim raspadom različitih izotopa radijuma, koji su pak članovi prirodnih radioaktivnih nizova. Koncentracija radona u vazduhu je zbog toga u tesnoj vezi sa koncentracijom radonovih predaka u zemljištu, stenama, građevinskom materijalu itd., ali takođe zavisi i od mnogih drugih parametara, kao što su ventilacija, poroznost materijala, ambijentalni uslovi i količina vlage u materijalu (UNSCEAR, 2000). Radon može biti u velikim količinama pristan u vodi, pijača voda iz vodovoda obično ne sadrži povećanu koncentraciju radona kao što je dato u radovima (Todorović N. , et al., 2012), (Nikolov, et al., 2012).

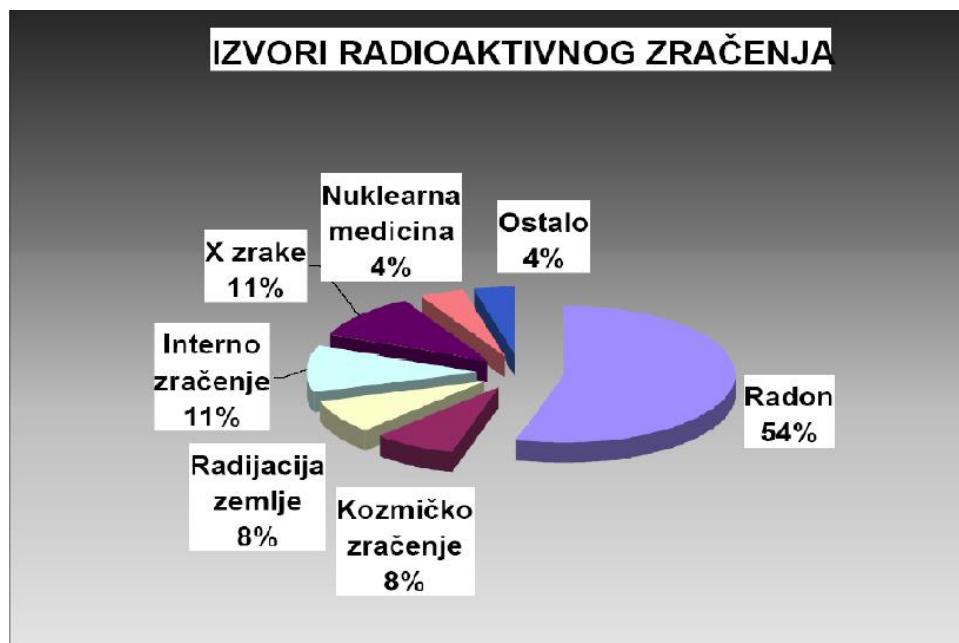
Svako jezgro radona ^{222}Rn se raspada kroz niz raspada preko polonijuma ^{218}Po , olova ^{214}Pb , bizmuta ^{214}Bi i polonijuma ^{214}Po i ^{210}Po (^{210}Po ima dug period poluraspada od približno 134 dana pa nije toliko značajan za istraživanja poredeći dosta manje periode poluraspada ostala dva izotopa) do olova ^{210}Pb . Prilikom svake transformacije jezgra emituju odgovarajuće jonizujuće zračenje: alfa čestice, beta čestice ili gama zrake ili kombinaciju čestica i zraka. Radon se raspada alfa raspadom do polonijuma ^{218}Po . Energija emitovane alfa čestice iznosi 5.49 MeV (Čonkić, 1997).

^{218}Po ima kratak period poluraspada, samo 3.05 minuta, što znači da se najveći deo raspadne za 6 min od vremena nastanka. Kao i radon i polonijum je alfa emiter i raspada se na oovo ^{214}Pb , uz emisiju alfa čestice energije 6.0 MeV. Oovo ^{214}Pb je takođe u čvrstom stanju, ima period poluraspada 26.8 minuta i raspada se emisijom beta čestice i gama zraka na bizmut ^{214}Bi . ^{214}Bi je isto u čvrstom stanju i beta emiter sa periodom poluraspada 19.8 minuta i njegovim raspadom nastaje polonijum ^{214}Po . ^{214}Po ima period poluraspada samo 164 mikrosekunde, emituje alfa česticu energije 7.69 MeV i raspada se na oovo ^{210}Pb koji nije od značaja za merenje koncentracije radona zbog dugog perioda poluraspada – 22.3 godine.

Potomci radona, iako su u čvrstom stanju su jezgra koja su inicijalno suspendovana u vazduhu (lebde). Ponekad mogu biti nanelektrisane čestice. Potomci koji su zapravo teški metali u praksi su veoma fine čestice koje su hemijski veoma reaktivne (Čonkić, 1997).

Glavni doprinos izloženosti čoveka radioaktivnom gasu radonu dolazi usled njegove inhalacije. Zahvaljujući činjenici da se radon dobro rastvara u vodi, radon se može pomoću nje transportovati na velika rastojanja. Izlaganje stanovništva visokim koncentracijama gase radona, kao i unošenje velikih koncentracija aerosola kratkoživećih produkata raspada radona, dovodi do ozračivanja prvenstveno organa za disanje, koje može prouzrokovati kancer pluća. U slučaju konzumiranja visokoradonskih voda, najviše su ugrožene osetljive ćelije unutar abdomena. Kancer želuca dovodi se u vezu i sa povećanom koncentracijom radona u vodi za piće (Lazarev, 2014). Molekuli u vazduhu koji su dostupni da se za njih prikače potomci radona pripadaju grupi aerosola. Tu spadaju na primer: molekuli vodene pare, prašine, dim od cigareta itd. Ovi molekuli bivaju dovoljno dugo dostupni u vazduhu da se za njih prikače radonovi potomci koji predstavljaju nevidljive fine čestice.

Radioaktivni aerosoli sa dijametrima u intervalu od 0.1 do 10 nm se najbolje talože u ljudskim plućima. Aerosoli većih dimenzija se zadržavaju u nosu i usnoj duplji ne dopirući do osjetljivog respiratornog epitela bronhijalnog stabla. Iako imaju mali domet alfa čestice radonovih potomaka deponovanih u plućima su izuzetno opasne zbog velike moći jonizacije. Promene na ćelijskom i molekularnom nivou izazvane ionizujućim zračenjem znatno su izraženije u ranim životnim fazama, što ukazuje na poseban zdravstveni rizik kod dece (Bikit I. , et al., 2012).



Slika 1.9 Raspodela godišnje doze koje prima stanovništvo od izlaganja izvorima ionizujućeg zračenja

Radon se, zbog svog kratkog vremena poluraspada, u vazduhu, vodi i zemljишtu uvek nalazi zajedno sa svojim potomcima (koji ne moraju biti u radioaktivnoj ravnoteži sa radonom). Biološki efekti radona, zapravo, u najvećoj meri potiču od kratkoživućih radonovih potomaka. Kako se radon najčešće izučava u kontekstu bioloških efekata, u literaturi i regulativi se često pod pojmom radon podrazumeva radon sa svojim potomcima, a pod izlaganjem radonu - izlaganje radonovim potomcima (ICRP, 1994), (European Council, 2014).

Istraživanja vršena poslednje decenije pokazuju da u normalnim uslovima preko 70% ukupne godišnje doze koju prima stanovništvo potiče od prirodnih izvora ionizujućih zračenja, pri čemu je preko 50% uslovljeno udisanjem prirodnog radioaktivnog gasa, radona ^{222}Rn , odnosno njegovih potomaka, slika 1.9 (ICRP, 1983).

Koncentracija radona na otvorenom prostoru pokazuje dnevne varijacije. Najveće koncentracije su noću i rano ujutru, kada često dolazi do temperaturne inverzije i radon ostaje zarobljen u prizemnim slojevima atmosfere. Danju zagrevanje Sunčevim zracima može izazvati turbulencije, što olakšava transport radona u

više slojeve atmosfere. Oscilacije u koncentraciji mogu biti i za faktor 10. S druge strane, koncentracija radona pokazuje i sezonske oscilacije zbog padavina, vetrova i temperature (UNSCEAR, 2000), (Živanović, 2016).

Radon i toron u zatvorenim prostorijama dospevaju iz zemljišta, građevinskog materijala, vode, prirodnog gasa i spoljne atmosfere, a odnos ovih doprinosa je drugačiji za svaki objekat. Prema UNSCEAR, procenjena prosečna koncentracija radona u zatvorenom prostoru je 40 Bq/m^3 . Koncentracije torona su mnogo manje izučavane, a srednja vrednost je ispod 10 Bq/m^3 (UNSCEAR, 2000).

1.6 Štetnosti jonizujućeg zračenja

Unutrašnja kontaminacija nastaje od radioaktivnih materija koje su unete u organizam gutanjem, udisanjem ili preko povređene ili nepovređene kože. Male količine radioaktivnih materija dospevaju u organizam kontaminiranim rukama, cigaretama ili drugim predmetima. Radioaktivne materije se mogu uneti u organizam i preko hrane i vode za piće, ređe vode iz vodovoda, a češće vode iz arterških česmi i bunara.

Ove radioaktivne materije se deponuju u organizmu, te predstavljaju dvojaku opasnost: opasnost od jonizujućeg zračenja koje ove materije ispuštaju i opasnost od trovanja tim materijalima. Te opasnosti zavise od više faktora: koliko je vreme života ove radioaktivne materije, koju vrstu zračenja ispušta, da li postoji selektivno deponovanje u nekom organu ili ne postoji i kojom se brzinom ova materija eliminiše iz organizma (Damjanović, 1962).

Unošenjem radioaktivnih izotopa kroz usta oni dolaze u digestivni trakt. Nerastvorljivi elementi će brzo proći kroz organe za varenje i biće izbačeni sa izmetom. Radioaktivni izotop unet kroz usta opasan je zato što u toku svog prolaska on zrači i jonizuje, što dovodi do oštećenja crevne sluzokože. Rastvorljivi izotopi su daleko opasniji. Ovi izotopi su apsorbovani i preko cirkulacije krvi razneti po celom organizmu. Neke se radioaktivne materije ravnomerno raspodele po svim ćelijama i tkivima organizma, dok druge pokazuju sklonost ka selektivnom taloženju u pojedine organe. Fosfor i natrijum se raspoređuju ujednačeno u organizmu, dok se, na primer, jod koncentriše u štitnoj žlezdi, a stroncijum u kostima (stroncijum je analog kalcijuma). Čim je radioaktivna materija ma na koji način prodrla u organizam i zadržala se u izvesnim organima, nju je izvanredno teško pokrenuti, a čak je i nemoguće da se ubrza prirodni tok njenog eliminisanja iz organizma. Iz ovih razloga bitno je da se izbegne svako nekontrolisano unošenje radioaktivnih materija u organizam (Damjanović, 1962).

Zato je za rad sa radioaktivnim materijama potrebno da se naprave i preurede posebne prostorije. Mesta na kojima se rukuje sa radioaktivnim izvorima moraju biti obeležena uz kontrolu koja je neophodna. Oprema, staklarija, alati i oprema za čišćenje, koji se upotrebljavaju u radioaktivnom području, ne smeju da se koriste na drugim mestima. Zabranjeno je da se u laboratorijama i prostorijama gde se radi sa otvorenim izvorima zračenja unosi hrana za ljudsku ishranu, čuva ta hrana ili koji slučajem konzumira, jer se vrši

izlaganje potencijalnom riziku kontaminacije radionuklidima, ovo se odnosi na profesionalno izložena lica koja rade sa otvorenim aktivnim izvorima zračenja, ali i na same pacijente koji tu borave.

Kvantitativni nivo zračenja koju primi pacijent ili profesionalno izloženo lice definisan je dozom zračenja. Doze zračenja definisane su u zakonskim regulativama i te preporuke se moraju poštovati („Sl. glasnik RS“ br. 36/2009 i 93/2012, 2009, 2012).

Sva lica koja rade sa izvorima jonizujućih zračenja moraju po završetku rada biti kontrolisana radi utvrđivanja da li postoji radiološka kontaminacija nekog dela tela ili odela. Za svaki deo tela definiše se maksimalna ozračenost iznad koje mogu nastupiti ozbiljne posledice po zdravlje same izložene osobe. Profesionalna lica su po zakonskim regulativama obavezna da nose zaštitne kecelje, olovne rukavice i svu neophodnu opremu kako bi se minimizirao uticaj zračenja.

Glavni cilj radioološke zaštite sastoji se u sprečavanju oštećenja od jonizujućeg zračenja. Njegovu bazu predstavlja pridržavanje preporučenih maksimalno dozvoljenih doza, ali radioološka zaštita iziskuje i sistematsko posmatranje da bi se otkrilo svako ozračivanje ili dejstvo zračenja. Ovim posmatranjem treba da budu obuhvaćene kako fizička tako i medicinska kontrola. Danas se simptomi zračenja mogu otkriti samo kod relativno visokih doza. Klinička ispitivanja su otežana zato što ne postoje izražena specifična oštećenja i što su letalni periodi od momenta ozračivanja do pojave posledica jako dugi. Ova činjenica ne smanjuje potrebu sistematskih lekarskih pregleda, koji se vrše sa ciljem da se otkriju efekti izazvani zračenjem, nego još zahteva da se lekarski pregledi dopune strogom kontrolom primjenjenog zračenja (Damnjanović, 1962).

Kao što je navedeno u (Milojević, Urošević, & Kurepa, 1961) radioizotopi imaju i dosta svojih pozitivnih strana. Najvažnija strana je korišćene u terapeutske medicinske svrhe kod pacijenata obolelih od različitih vrsta karcinoma. Korišćenje radioizotopa u ove svrhe datira u poslednjih skoro stotinu godina i stalno se usavršava. Pošto se danas skoro svaki element može dobiti u svom nestabilnom stanju, stvorena je mogućnost lečenja putem unošenja različitih radiooloških preparata u organizam (npr. lečenje raka štitne žlezde ubrizgavanjem joda 131) Sem toga, cene radioaktivnih izvora danas su neuporedivo niže nego u vreme kada se koristio samo radijum.

Sa gledišta zaštite od zračenja doze treba održavati što je moguće nižim u skladu sa principom **ALARA** (As Low As Reasonably Achievable) (Terzić & Šiljegović, 2013).

Ozračivanje populacije radionuklidima iz vode za piće uglavnom je malo i nastaje kao posledica raspada prirodnih radionuklida uranovog i torijumovog niza. Jednogodišnje konzumiranje vode za piće ne sme imati doprinos veći od 5%-nog ukupnog prosečnog ozračivanja populacije, što znači da od jednogodišnjeg konzumiranja vode za piće doza ozračivanja ne sme biti veća od 0,1 mSv. Ispod ovog referentnog nivoa doze, voda se može koristiti za piće (Rajković, Stojanović, Lačnjevac, Tošković, & Stanojević, 2008).

1.6.1 Biološki efekti jonizujućeg zračenja

Jonizujuća zračenja imaju energiju potrebnu za ionizaciju atoma ili molekula. Postoje dve grupe jonizujućih zračenja. Kod prve grupe dolazi do emisije čestica (alfa, beta zračenje), a kod drugih nosilac energije je foton. Poznavanje mehanizma interakcije jonizujućeg zračenja sa materijom kroz koju prolazi predstavlja preduslov za razumevanje bioloških efekata zračenja i procenu zdravstvenog rizika. Samim procesom ionizacije dolazi do izbacivanja elektrona iz nekog od svojih položaja i tada se narušava elektoneutralnost čitavog atoma, tada je čitav sistem veoma reaktivan, može graditi stabilna jedinjenja u kratkom vremenskom periodu.

Iako je još od samog otkrića radioaktivnosti bilo jasno da deo energije jonizujućeg zračenja, emitovanog iz izvora biva apsorbovan u materiji kroz koju prolazi, nije moglo da se odgonetne izuzetno visok stepen osjetljivosti živih organizama na ovu vrstu zračenja (Todorović, N, 2009).

Kada visokoenergetsko nuklearno zračenje prolazi kroz materiju (bez obzira da li je živa ili neživa) dolazi do primarne interakcije sa elektronima date sredine. Energija upadnog zračenja biva predata elektronima (nastaju brzi elektroni) koji prolazeći dalje kroz materiju gube tu energiju različitim mehanizmima, pri čemu su najinteresantniji ionizacija i ekscitacija atoma i molekula materije-mete. Ionizacioni potencijal za većinu elemenata koji ulaze u sastav organskih molekula raznih tkiva je do 20 eV, te izbačeni elektroni imaju širok spektar energija i proizvode niz sekundarnih ekscitacija i ionizacija. Veliki deo energije koju ionizujuće zračenje preda atomima supstance kroz koju prolaze u krajnjoj instanci se pretvori u toplotu. Međutim, ustanovaljeno je da predata energija ionizujućeg zračenja koja temperaturu ljudskog tela može da povisi za promil, istovremeno može da ima letalno dejstvo. Ovaj "radiobiološki paradoks" objašnjen je tek sredinom prošlog veka nakon otkrića DNK malih (oko $1\mu\text{m}$) vitalnih centara od kojih direktno zavisi preživljavanje ćelije. Mehanizam interakcije ionizujućeg zračenja razjašnjen je nakon otkrića helikoidne strukture DNK (Krmar, 2013).

Ovojnicu spirale diheliksa (DNK) čine šećeri - pentoze, povezani preko fosforne kiseline, a središnji deo heterociklične organske baze (purinske i pirimidinske) međusobno povezane vodoničnim vezama. Vodonične veze su odgovorne kako za helikoidnu strukturu tako i za raspored baza u D NK i javljalju se između jedne purinske i jedne pirimidinske baze. Te dve baze tačno odgovaraju jedna drugoj i samo njih dve mogu da grade jedan par sa strogo definisanom dužinom vodonične veze. Tako su u D NK adenin i timin (A-T) vezani preko dve, a citozin i gvanin (C-G) preko tri vodonične veze (Pavićević & Matić;, 2011).

Direktna interakcija ionizujućih zračenja sa elektronima D NK molekula manifestuje se prekidom jednog ili oba heliksa, usled kidanja fosfodiestarskih veza, oštećenjem same baze i/ili kidanjem vodoničnih veza. Kidanje vodoničnih veza dovodi do nemogućnosti prepoznavanja parova A-T i C-G pri replikaciji D NK, odnosno do neregularnog sparivanja i mutacija, koje mogu da imaju i letalno dejstvo. Direktna interakcija u

zavisnosti od predate energije može da izazove gubitak sposobnosti deobe ćelije, prestanak specifičnih funkcija ili čak njeno trenutno uništenje (Todorović, N, 2009).

Međutim, ovaj tip interakcije ne može da objasni zašto su, na primer, virusi neuporedivo otporniji na dejstvo ionizujućih zračenja nego čovek. To je objašnjeno postojanjem indirektne interakcije, izuzetno važne za razumevanje procesa koji se odvijaju u ćeliji tokom ozračivanja. Naime, oko 70% mase tela čoveka čini voda (kod ugojenih i starih procenat je manji, kod dece je veći, a u trećem mesecu fetalnog života iznosi čak 94%). Ćelija ljudskog organizma sadrži oko 10^{13} molekula vode. Pri ozračivanju ćelije dolazi do jonizacije i ekscitacije vode. Prilikom jonizacije stvara se jon vode H_2O^+ i oslobađa se elektron koji primljenu energiju gubi pri daljim sudarima. Kada se elektroni dovoljno uspore opkoli ih četiri jako polarizovana molekula vode i formira se tzv. "akvatizovani" elektron e_{aq} , koji živi samo 100 μs . Akvatizovani elektron sa jonom vode formira dva visokoreaktivna radikala H^+ i OH^- . Eksitovan molekul vode se takođe raspada na dva radikala H^+ i OH^- , dok se H_2O^+ jon raspada na vodonikov, odnosno hidronijum jon H_3O^+ i na OH^- radikal. Vodonikov i hidroksilni radikal žive samo oko 1 μs . Tako, kao rezultat radiolize vode, usled dejstva ionizujućih zračenja u ćeliji nastaju tri visokoreaktivna radikala: akvatizovani elektron, OH^- - radikal i H^+ -radikal u približnom odnosu 45%: 45%: 10%. Ovi radikali veoma brzo reaguju sa komponentama DNK molekula. H^+ radikal izaziva najčešće prekid jednog ili, znatno ređe, oba lanca u DNK. Za većinu indirektnih oštećenja uzrokovanih ionizujućim zračenjem se smatra da su nastala usled OH^- radikala, koji reaguje sa skoro svim tipovima molekula u živim ćelijama. U DNK izaziva oštećenja baza, pri čemu su pirimidinske osetljivije od purinskih (Todorović, N, 2009), (Krmar, 2013).

OH^- i H^+ radikali i akvatizovani elektroni, koji nisu učestvovali u hemijskim promenama u ćeliji se brzo rekombinuju uz oslobađanje toplice. Pri rekombinaciji H^+ radikala i akvatizovanog elektrona nastaju molekuli vode, i vodonika i OH^- ion, međutim rekombinacijom dva OH^- radikala nastaje još jedan štetan molekul - jak oksidans, H_2O_2 . Delovanje slobodnih radikala u prisustvu kiseonika je znatno opasnije usled reakcije H^+ radikala i akvatizovanih elektrona sa kiseonikom: $\text{H}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2^+$ (jak oksidans), koji rekombinacijom prelazi, takođe, u H_2O_2 i kiseonik, a dva akvatizovana elektrona sa kiseonikom formiraju O_2^- , superoksid anjon. Superoksid anjon je, takođe, veoma reaktiv i dovodi do oštećenja DNK, proteina i ćeljskih membrana, te se efekat ionizujućih zračenja višestruko pojačava u prisustvu O_2 (Krmar, 2013).

1.6.2 Zaštita od alfa zračenja

Alfa zračenje pri prolasku kroz materijalne sredine brzo gubi svoju energiju i tako se potpuno apsorbuje u vrlo tankim slojevima materijala. Nekoliko listova papira ili tanke aluminijiske folije debljine 0.4 mm dovoljni su da apsorbuju sve alfa čestice koje emituju radioaktivni materijali. U vazduhu one pređu samo nekoliko desetina milimetara pre nego što izgube svu energiju i postanu atomi helijuma. Površinski sloj kože

na ljudskom telu takođe apsorbuje alfa čestice energije do 7.5 MeV. Ove činjenice upućuju na zaključak da alfa zraèenje ne predstavlja opasnost za spoljne izlaganje, pa se korišćenje zaštitnih zidova iskljuèuje (Nikèević & Anđelić, 2011).

Pri korišćenju otvorenih izvora alfa zraèenja zaštita se svodi na spreçavanje unošenja radioaktivnih materijala u organizam.

1.6.3 Žaštita od beta zraèenja

Domet beta čestica u vazduhu iznosi nekoliko metara. Kako štetno deluju na kožu, a posebno na oèi, pri radu sa beta emiterima moraju se koristiti zaštitni ekrani. Njihov izbor zavisi od energije beta-čestica a takođe i od prinosa zakoènog X zraèenja, koje se javlja pri prolasku beta-zraèenja kroz materijal. Iako se potpuna apsorpcija beta zraèenja može postići vrlo tankim slojevima težih materijala oni se izbegavaju pošto je prinos zakoènog X zraèenja u njima mnogo veći nego kod lakih materijala. Zato se najčešće koriste zidovi od aluminijskog stakla ili pleksiglasa. Pri radu za izvorima beta zraèenja potrebno je nositi i zaštitne naoèare (Nikèević & Anđelić, 2011).

1.7 Doze zraèenja

U cilju zaštite živih organizama od zraèenja, potrebno je ustanoviti kontrolu intenziteta i efekata jonizujuèeg (radioaktivnog) zraèenja. Postupak merenja energije koju jonizujuće zraèenje preda ozraèenoj materiji predstavlja dozimetriju jonizujuèeg zraèenja, koja se iz same nuklearne fizike izdvaja kao poddisciplina. Pojmovi koji se najčešće susreùu u dozimetriji jonizujuèeg zraèenja su doze i jedinice u kojima se one izražavaju (Lazarev, 2014).

Apsorbovana doza (D) se definiše kao apsorbovana energija po jedinici mase:

$$D = \frac{dE}{dm}, \quad [D] = 1\text{Gy} = \frac{1\text{J}}{\text{kg}} \quad 1.36$$

Jedinica za apsorbovanu dozu je **grej (Gy)**. U sluèaju kada je energija zraèenja ravnomerno rasporeðena po apsorberu, apsorbovana doza može se izraziti u obliku: $D = \Delta E / \Delta m$, gde je ΔE – srednja apsorbovana energija određene vrste zraèenja u apsorberu mase Δm . Kako ta energija izaziva ionizaciju tkiva, ukupna apsorbovana energija može da se naðe kao proizvod ukupnog broja stvorenih jonskih parova N i apsorbovane energije pri stvaranju jednog jonskog para ε , odnosno $\Delta E = N \cdot \varepsilon$. Ako se sa n oznaèi broj jonskih parova po jedinici mase, onda je $n = N / \Delta m$, pa se dobija da je $D = n \cdot \varepsilon$.

Ekspoziciona doza (X), ili doza izlaganja, uvedena je za jonizujuće fotonsko zraèenje (rendgensko i gama) ogranièeno iskljuèivo na vazduh. Ova veličina predstavlja kolièinu nanelektrisanja dQ svih jona nastalih interakcijom upadnih fotona sa molekulima jediniène mase vazduha:

$$X = \frac{dQ}{dm}, \quad [X] = \frac{C}{kg} \quad 1.37$$

Izražava se u jedinicama C/kg (Lazarev, 2014).

U praktičnoj dozimetriji se najčešće meri ekspoziciona doza. Kako važi relacija $1Gy = 26 mC/kg$, jasno je da se merenjem ekspozicione doze može odrediti apsorbovana doza zračenja⁵.

Efekat ionizujućeg zračenja zavisi ne samo od veličine apsorbovane ili ekspozicione doze već i od vremena boravka organizma u polju zračenja. Nije svejedno da li osoba prima određenu dozu u toku jednog sata, dana ili godine. Zbog toga se uvode još dve dozimetrijske veličine.

Brzina ili jačina apsorbovane doze, koja predstavlja priraštaj apsorbovane doze u jedinici vremena:

$$I_D = \frac{\Delta D}{\Delta t}, \quad [I_D] = 1 \frac{Gy}{s} = 1 \frac{W}{kg} \quad 1.38$$

Brzina ili jačina apsorbovane doze, koja predstavlja priraštaj ekspozicione doze u jedinici vremena:

$$I_X = \frac{\Delta X}{\Delta t}, \quad [I_X] = 1 \frac{C}{kg \cdot s} = 1 \frac{A}{kg} \quad 1.39$$

Četiri navedene veličine dobro opisuju apsorbovano zračenje u neživoj materiji. Međutim, one ne iskazuju dovoljno efekte štetnog dejstva zračenja na biološke sisteme. Iz tih razloga uvedene su još dve dozimetrijske veličine.

Ekvivalentna doza (H)⁶ u nekoj tački definiše se relacijom:

$$H = Q \cdot N \cdot D \quad 1.40$$

gde je Q – faktor kvaliteta kojim se opisuje relativno biološko dejstvo raznih vrsta zračenja (npr. za X , gama i beta zrake: $Q = 1$, za neutronsko i protonsko zračenje je $Q = (3-10)$, a za alfa zračenje $Q = 20$). Broj N predstavlja proizvod svih drugih modifikujućih parametara (npr. vrsta ozračenog tkiva, klimatski uslovi, geometrija sredine i drugo) koje je *Međunarodna komisija za radiološku zaštitu (ICRP)* specificirala je $N \approx 1$. Jedinica za ekvivalentnu dozu zračenja je *sivert* $1Sv = 1J/kg$. Efektivna doza zračenja prema („Sl. glasnički RS“ br. 36/2009 i 93/2012, 2009, 2012) za pojedinaca iznosi $1mSv$ godišnje.

Efektivna doza (E). Poznato je da različiti organi ili tkiva nisu podjednako osetljivi na zračenje. Drugim rečima, ista doza određenog zračenja izaziva različite biološke efekte kod različitih delova ljudskog tela. Zbog toga se za karakterizaciju štetnog delovanja ionizujućeg zračenja uvodi efektivna doza koja je definisana relacijom:

$$E = W \cdot H \quad 1.41$$

⁵ Većina dozimetara koji su u upotrebi kalibrirana je u starim mernim jedinicama za ekspozicionu dozu, u rendgenima (R), pa je potrebno preračunavanje ovih jedinica na nove. To se postiže pomoću sledeće relacije: $1R = 1,6 \cdot 10^{-4} C/kg$ ili $1Gy = 100R$ (Lazarev, 2014).

⁶ Efektivna doza zračenja prema („Sl. glasnički RS“ br. 36/2009 i 93/2012, 2009, 2012) za pojedinaca iznosi $1mSv$ godišnje, dok je za profesionalno izložena lica ta granica pomerena ka $20 mSv$ i u proseku od više godina, ne sme preći granicu od $50 mSv$ po godini.

gde je W – težinski koeficijent za pojedine organe, a H ekvivalentna doza za te organe. Vrednosti težinskog faktora, kao mere osetljivosti pojedinih organa i tkiva data je u Tabeli 1.2. Zbir svih težinskih koeficijenata jednak je jedinici (Lazarev, 2014).

Tabela 1.2 Težinski koeficijenti za pojedina ljudska tkiva

Organi	W
Gonade	0,25
Dojka	0,15
Crvena krvna zrnca	0,12
Pluća	0,12
Tiroïdna žlezda	0,03
Kosti	0,03
Ostali organi	0,3

Do sada definisane veličine su date radi sticanja predstave o pojmu doznog kriterijuma, postoji još dosta veličina definisanih na slične načine. Potrebno je definisati dozni kriterijum konkretno za vodu, odnosno kolika se to doza zračenja može primiti ingestijom vode koja sadrži pojedine radionuklide.

Učešće vode za piće u ukupnoj izloženosti zračenju obično je veoma mala i uglavnom se radiološki testira na radionuklide uz uranovog i torijumovog niza (WHO, 2004). Za pijaču vodu ukupna indikativna doza TID (efektivna doza od radionuklida u vodi za piće koja ne uključuje ^3H i ^{40}K , radon i njegove potomke) je 0,1 mSv godišnje (EC, 1998).

Takozvani *GL* (*guidance levels*) nivoi za pojedinačne radionuklide u vodi računaju se pomuću jednačine:

$$GL = \frac{IDC}{h_{ing.} \cdot q} \quad 1.42$$

gde je: IDC – individualni dozni kriterijum, ekvivalentan 0,1 mSv godišnje; $h_{ing.}$ – dozni koeficijent ingestije za odraslu osobu ($\text{mSv} \cdot \text{Bq}^{-1}$); q – je zapremina vode koju konzumira odrasla osoba tokom godine, a to je oko 730 l godišnje (WHO, 2004). GL nivoi za ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{137}Cs dati su u Tabeli 1.3.

Tabela 1.3 GL (*guidance levels*) radionuklida u vodi za piće (WHO, 2004).

Radionuklid	GL
^{238}U	10
^{226}Ra	1
^{232}Th	1
^{137}Cs	10

Procena efektivne doze za svaki pojedinačni radionuklid treba da bude sumarno ≤ 1 , odnosno:

$$\sum_i \frac{C_i}{GL_i} \leq 1 \quad 1.43$$

gde C_i predstavlja koncentraciju aktivnosti pojedinačnog radionuklida prisutnog u pijačoj vodi.

Ukupna doza GD je zbir doprinosa doza pojedinačnih radionuklida GD_i koji se računaju iz koncentracije aktivnosti C_i sa validnim faktorom konverzije doze $h(q_i)$, za odrasle osobe koje imaju godišnju konzumaciju vode (KM) od 730 l godišnje (IAEA, 1996).

$$GD = \sum_i GD_i = \sum_i h(q_i) \cdot C_i \cdot KM \quad 1.44$$

Dozni konverzionalni faktori $h(q_i)$ iznose: $4,5 \cdot 10^{-8} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ za ^{238}U ; $2,8 \cdot 10^{-7} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ za ^{226}Ra ; $2,3 \cdot 10^{-7} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ za ^{232}Th i $1,3 \cdot 10^{-7} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ za ^{137}Cs (IAEA, 1996). Izvedene koncentracije aktivnosti radionuklida prema zakonskoj regulativi Republike Srbije date su u ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013, 2011, 2013), i o tome biće reči u poglavljju 1.9.

1.8 Radioekološki problemi vode

Voda je bezbojna, prozračna tečnost bez ukusa i mirisa, koja se sastoji od 11,11 % vodonika i 88,89 % kiseonika. Oko 70 % površine Zemlje pokriveno je vodom. Vode mogu biti površinske i podzemne. Hemski sastav podzemnih voda formira se kao rezultat uzajamnog dejstva vode i materije u Zemljinoj kori, kao i materija koje vode poreklo iz drugih geosfera. Karakter toga dejstva može se predstaviti sledećom šemom:

$$\text{voda} \Leftrightarrow \text{stena} \Leftrightarrow \text{gas} \Leftrightarrow \text{živa materija}$$

Na formiranje hemijskog sastava utiču brojni faktori i procesi koji se dešavaju u Zemljinoj kori (Dragišić, 1997).

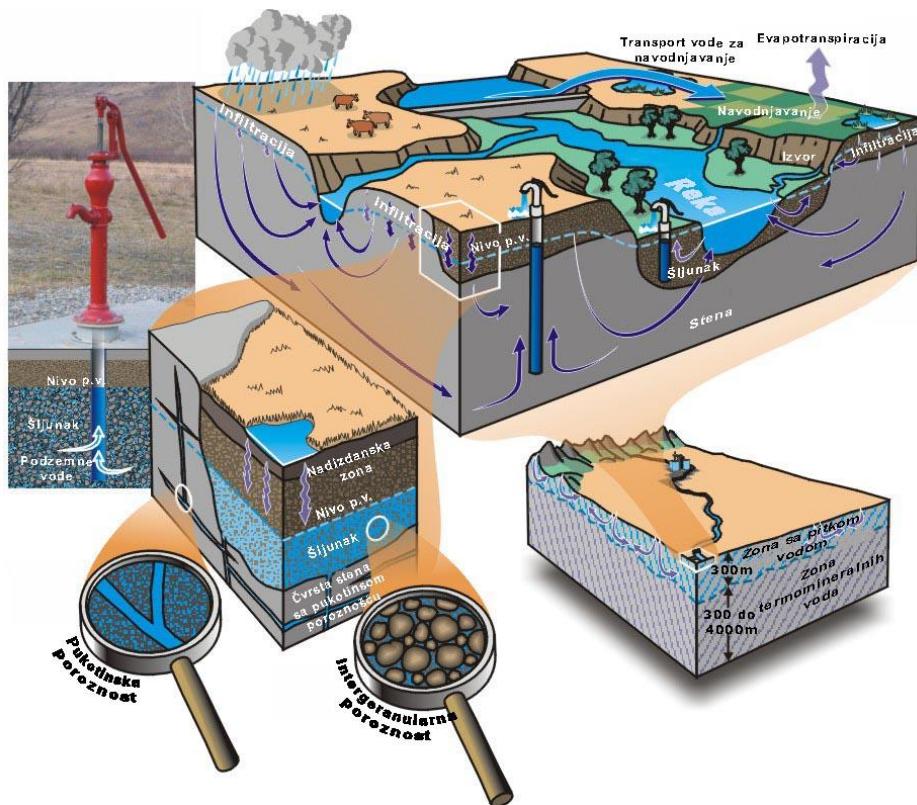
U podzemnim vodama otkriveno je više od 40 mikrokomponenata. One se u podzemnim vodama mogu naći u vidu prostih jona, molekula, koloidnih i lebdećih čestica, kao i u vidu minerala i organskih kompleksa. Važnije mikrokomponente mogu se svrstati u nekoliko grupa:

- mikrokomponente koje obrazuju anjone (J, Mo, As, Se),
- alkalni metali (Li, Rb, Cs),
- rasejani metali (Be),
- halkofilni elementi (Zn, Cu, Pb, Ag) i
- **radioaktivni elementi (U, Ra).**

Gasovi u podzemnim vodama nalaze se kako u rastvorenom, tako i u slobodnom stanju (radon najopasniji). Pri umanjenju pritiska, rastvoreni gasovi prelaze u slobodne. Gasovi u podzemnim vodama su atmosferskog, biogenog i radioaktivnog porekla. Sve podzemne vode su osim retkih izuzetaka, u određenom stepenu radioaktivne. Njihova radioaktivnost uglavnom potiče od radionuklida ^{238}U , ^{235}U i ^{232}Th . U manjem stepenu radioaktivnost potiče i od kalijuma - ^{40}K i rubidijuma - ^{87}Rb . Pored navedenih, u podzemnim vodama se javljaju i drugi radionuklidi prirodnog i veštačkog porekla. Sadržaj radionuklida u podzemnim vodama je znatno manji nego u stenama. Najveće koncentracije radionuklida nalaze se u podzemnim vodama ležišta urana (Dragišić, 1997).

Migrativnost i koncentracija radionuklida u podzemnim vodama, pored njihovog karaktera, zavisi i od drugih faktora, kao što su:

- geohemijski uslovi sredine (pH - Eh).
- hemijski sastav podzemnih voda,
- mineraloški i hemijski sastav stena,
- granulometrijski sastav stena,
- jonska zamena i dr.
- Od prirodnih radionuklida, najzastupljeniji u podzemnim vodama su uran, radijum i radon (Dragišić, 1997).



Slika 1.10 Površinske i podzemne vode u litosferi

Zdravstveno ispravna voda za piće jedan je od osnovnih preduslova dobrog zdravlja i jedan od osnovnih pokazatelja zdravstvenog stanja jedne zemlje. Evidencija o indikatorima kvaliteta vode za piće, kojom se snabdevaju gradska naselja u Republici Srbiji, vodi se u Institutu za javno zdravlje Srbije. Zdravstvena ispravnost vode za piće se smatra bezbednom ako njen kvalitet zadovoljava regulativu u sistemu kontinuirane kontrole i praćenja (Taka, Pejanović, & Živković, 2009). Opštepoznato je da AP Vojvodina ima najlošiju vodu po kvalitetu u Srbiji zbog prisustva arsena i amonijaka.

Dobar deo zdravstvene "neispravnosti" vode za piće bio bi "otklonjen" usklađivanjem odredbi Pravilnika o higijenskoj ispravnosti vode za piće sa direktivama EU u delu u kome su one neopravdano restriktivnije (Taka, Pejanović, & Živković, 2009).

1.9 Zakonska regulativa

Prvo izdanje preporuka o radiološkim aspektima kvaliteta vode za piće, Svetska zdravstvena organizacija štampala je 1984.god. (WHO, 1993). Tolerantni nivoi radioaktivnih supstanci u vodi za piće, preporučeni u tom prvom izdanju preporuka WHO, bili su zasnovani na, u tom trenutku, raspoloživim uninformacijama o stepenu rizika izlaganja jonizujućem zračenju, skoncentrisanom uglavnom u ICRP publikaciji 26 (ICRP, 1977). Takođe, Svetska zdravstvena organizacija, saglasno preporukama Međunarodne komisije za zaštitu od zračenja (ICRP) izdaje 1990.god. preporuke o radiološkim aspektima kvaliteta vode za piće (ICRP, 1990), kao i u kasnijem izdanju preporuka iz 1993.god. (WHO, 1993), i u posebnoj glavi razmatra radiološke aspekte kvaliteta vode za piće i propisuje metode za proveru kvaliteta i tolerantnog sadržaja pojedinih radionuklida ili ukupnog sadržaja α - i β -nestabilnih radionuklida, bilo iz prirode, bilo proizvedenih od strane čoveka (Rajković, Stojanović, Lačnjevac, Tošković, & Stanojević, 2008).

Preporučene referentne vrednosti za α -nestabilne radionuklide u vodi za piće iznose $0,1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ a za β - nestabilne radionuklide $1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. Veće vrednosti specifične aktivnosti α - i/ili β -nestabilnih radionuklida ne znači automatski nepodobnost vode za ljudsku konzumaciju ("Sl. list SRJ", br. 42/98 i 44/99, 1998, 1999). Za ocenu podobnosti vode za piće sa radiološkog aspekta potrebno je za preporučeni referentni nivo doze od $0,1 \text{ mSv}$ odrediti koncentracije pojedinih radionuklida u vodi za piće. Pošto su ovi podaci dati po regulativi iz 1998. godine, u danjem tekstu će biti dato je sadašnje stanje i da li ima nekih promena u granicama koje su tada važile.

Doza ozračivanja organizma od radionuklida unetih vodom za piće zavisi od količine unetih radionuklida i od njihovog metabolizma i kinetike u organizmu. Proračun tolerantne koncentracije radionuklida u vodi za piće zasniva se na ukupnoj količini radionuklida unetih u organizam u toku jedne godine, pri konzumiranju 2 dm^3 vode dnevno, uzimajući u obzir parametre metabolizma kod odraslog – „referentnog“ čoveka (ICRP, 1975).

Srbija kao zemlja kandidat za članstvo u Evropskoj uniji već 2009. počela je da usklađuje svoju zakonsku regulative u ovoj oblasti. Tako je, 2009 donet zakon o zaštiti od jonizujućeg zračenja i o nuklearnoj sigurnosti uz dopunu i izmenu 2012. godine. 2011. godine uz dopunu i izmenu 2013. ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013, 2011, 2013) donet je pravilnik koji propisuje sadržaj radionuklida u vodi za piće, i svim drugim životnim namirnicama koje čovek svakodnevno koristi.

U članu 2 ovog pravilnika jasno se kaže da nije dozvoljeno namerno dodavanje radionuklida u vodu za piće, životne namirnice, stočnu hranu, igračke, sredstva za održavanje lične higijene, negu i ulepšavanje lica i tela i nakit u procesu proizvodnje, pritom se zabranjuje sam uvoz istih ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013, 2011, 2013).

Tabela 1.4 Izvedene koncentracije aktivnosti pojedinačnih radionuklida u vodi za piće ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013, 2011, 2013)

Radionuklid	Izvedena koncentracija (Bq/l)
^{14}C	2,3E+02
^{60}Co	4,0E+01
^{90}Sr	4,9 E+00
^{131}I	6,2 E+00
^{134}Cs	7,2 E+01
^{137}Cs	1,0 E+01
^{210}Pb	2,0 E-01
^{224}Ra	2,1 E-01
^{226}Ra	4,9 E-01
^{228}Ra	2,0 E-01
^{232}Th	5,9 E-01
^{235}U	2,9 E+00
^{238}U	3,0 E+00
^{239}Pu	5,5 E-01
^{241}Am	6,8 E-01

Prosečan godišnji unos vode po stanovniku iznosi 730 litara. Doprinos efektivnoj dozi koji potiče od unosa tricijuma ^3H , kalijuma ^{40}K , radona ^{222}Rn , i torona ^{220}Rn i radonovih potomaka vodom za piće nije uračunat u graničnu vrednost efektivne doze od $0,1 \text{ mSv} \cdot \text{god}^{-1}$. Granična vrednost aktivnosti ^3H u vodi za piće je $100 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Granična vrednost ukupne aktivnosti alfa nestabilnih radionuklida je $0,5 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Granična vrednost ukupne aktivnosti beta nestabilnih radionuklida je $1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Ukoliko je izmerena vrednost ukupne

aktivnosti alfa nestabilnih radionuklida ili ukupne aktivnosti beta nestabilnih radionuklida u vodi za piće iznad vrednosti koje su neophodna je identifikacija i određivanje sadržaja pojedinačnih radionuklida. Voda za piće se ne može zabraniti za upotrebu na osnovu izmerenih vrednosti ukupne aktivnosti alfa nestabilnih ili beta nestabilnih radionuklida, ukoliko nije određen sadržaj pojedinačnih radionuklida. Izvedene koncentracije pojedinačnih radionuklida za vodu za piće utvrđene su u Tabeli 1.4 ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013, 2011, 2013).

Iz Tabele 1.4 se video da je koncentracija aktivnosti radijuma 226 u vodi za piće $0,49 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, dok je ta granica duplo niža za njegova druga dva izotopa.

Granice sadržaja radionuklida u vodi za napajanje životinja jednake su granicama koje su propisane za vodu za piće. Granice sadržaja radionuklida u lekovima jednake su granicama kontaminacije propisanim za vodu za piće. Granica sadržaja ^{226}Ra u mineralnim fosfatnim đubrивima iznosi $1000 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, i to za mineralna đubriva koja sadrže makrohranljivi element fosfor, a koja se kao takva stavljaju u promet i primenuju, kao i za sirovine za njihovu proizvodnju ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013, 2011, 2013).

Pravilnikom o higijenskoj ispravnosti vode ("Sl. list SRJ", br. 42/98 i 44/99) definisano je šta sve utiče na higijensku ispravnost vode. Higijenski ispravna voda za piće je voda koja odgovara između ostalog i u pogledu radioloških osobina, tako su i u ovom pravilniku navedene gorepomenute vrednosti alfa i beta aktivnosti.

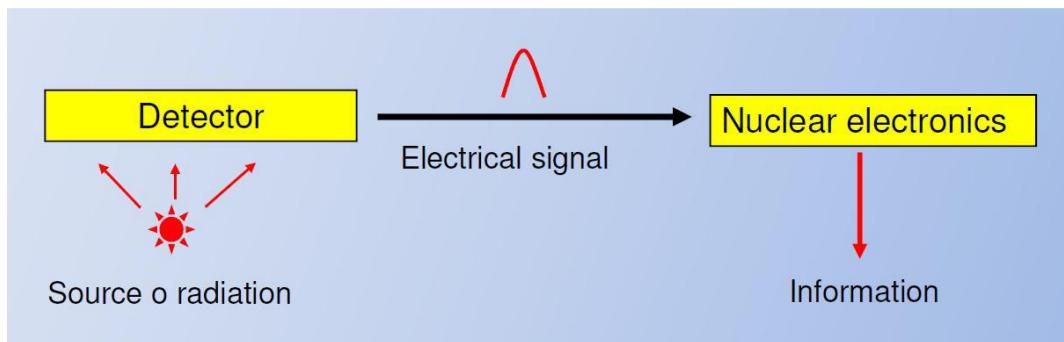
2 Detekcija zračenja i merenje

Jonizujuće zračenje se ne može neposredno opažati. Da bi se otkrilo prisustvo ovog zračenja, kao i njegovih karakteristika, neophodno je koristiti posebne uređaje – detektore jonizujućeg zračenja. Prilikom prolaska zračenja kroz detekcionu sredinu dolazi do raznih procesa na čijim se efektima zasniva rad detektora. Većina uređaja koristi fizičko dejstvo zračenja, kao što su ionizacija ili ekscitacija atoma detekcione sredine (Nikčević & Andelić, 2011).

U procesu detekcije zračenja mogu se izdvojiti tri etape. Da bi bilo detektovano zračenje mora da dospe u efikasnu (osetljivu) zapreminu detektora. Posle prolaska zračenja dolazi do promena u ovoj sredini koja može biti u gasnom, tečnom ili čvrstom agregatnom stanju. Otuda i jedna od podela detektora na gasne, tečne ili čvrste. Treća etapa i krajnji rezultat detekcije je stvaranje indikacije o zračenju (Nikčević & Andelić, 2011).

Sam proces detekcije podrazumeva utvrđivanje da li zračenje postoji, ako postoji onda je potrebno vršiti dalja ispitivanja. Ta dalja ispitivanja podrazumevaju otkrivanje tipa zračenja, potom njegove energije i radionuklida koji emituju to zračenje. Prisustvo radionuklida u nekom uzorku i njegovo određivanje predstavlja kvalitativnu procenu, a njihova količina u odgovarajućim jedinicama kvantitativnu meru procenjenu za dati uzorak. Često se određuje i broj čestica koje emituje sam izvor. Detektor ima funkciju da odredi svaku od navedenih veličina (Leo, 1994).

Detekcija zračenja sama po sebi je univerzalan proces za sve postojeće vrste detektora i može se ilustrovati kao što je dato na slici 2.1.



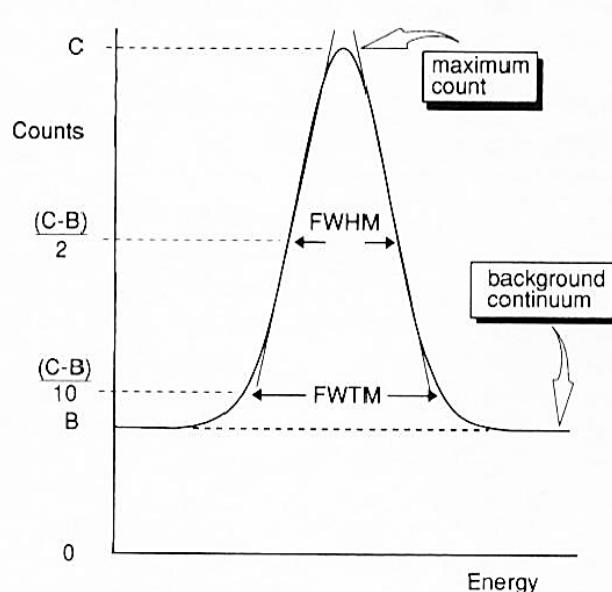
Slika 2.1 Univerzalni princip detekcije zračenja svih detekcionih sistema

Kao rezultat interakcije zračenja sa aktivnom površinom detektora proizvode se nosioci nanelektrisanja. Prenosioci nanelektrisanja mogu biti joni, ili parovi elektron-šupljina, u zavisnosti od tipa detektora koji se koristi. Unutar same zapreme detektora postoji električno polje koje omogućava da se ovi nosioci nanelektrisanja sakupljaju i na taj način proizvode električni signal (nanelektrisanje) koji se pretvara u naponski signal (impuls). Intenzitet signala zavisi od broja nosilaca nanelektrisanja koji su sakupljeni, a on direktno

zavisi od deponovane energije na samom detektoru (energije koju je čestica ili foton predala detektoru) (L'Annunziata, 1998).

Osnovne karakteristike svakog detektora su efikasnost i energetska rezolucija. Pod efikasnošću detekcije se podrazumeva odnos broja čestica ili fotona koje emituje izvor i broja impulsa koje registruje detektor.

Energetska rezolucija detektora je sposobnost detektora da razlikuje čestice ili fotone sličnih odnosno bliskih energija. Ova karakteristika se odnosi samo na detektore koji imaju mogućnost da snime energiju detektovane čestice ili fotona (nije primenljivo na GM brojače). Energetska rezolucija se može izraziti kao **FWHM - Full Width at Half Maximum** ili **FWTM - Full Width at Tenth Maximum**, slika 2.2. Čestice odnosno fotoni formiraju odgovarajući pik, širina pika se meri uvek iznad kontinualnog background-a. Jedinice za FWHM i FWTM su keV i MeV (L'Annunziata, 1998).



Slika 2.2 Energetska rezolucija detektora na piku koji formira - FWHM (FWTM)

2.1 Vrste detektora

Zavisno od vrste radne sredine koju poseduju detektori se mogu podeliti obično na tri vrste

- Gasni detektori
- Scintilacioni detektori
- Poluprovodnički detektori

U gasovima se najjednostavnije može prikupiti nanelektrisanje koje stvara zračenje. Jednostavnom primenom električnog polja, elektroni i stvoreni joni će se kretati ka odgovarajućim elektrodama. Zbog toga najveći broj detektoru koristi gas kao radnu sredinu. Osim gasa sličan postupak se može izvesti i sa poluprovodnicima. Zračenje prilikom prolaska kroz poluprovodnički materijal proizvodi elektrone i šupljine koji se mogu jednostavno prikupiti električnim poljem. U nekim materijalima ionizacija sa sobom povlači emisiju svetlosti. Svetlosna energija koju neki scintilacioni materijali emituju nakon interakcije sa zračenjem se jednostavno može pretvoriti u električni signal. Sve tri navedene vrste detektoru spadaju u tzv. detektore električnog tipa (Krmar, 2013), (Majer, 1965).

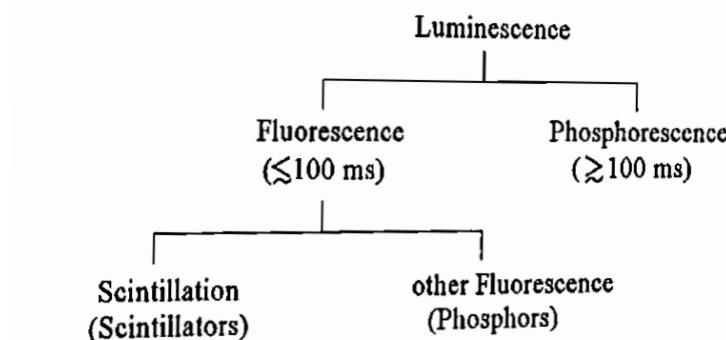
Srbija je u 2017. godini donela poseban pravilnik o detektorima ionizujućeg zračenja. Ovim pravilnikom propisuju se zahtevi za detektore ionizujućeg zračenja koji se koriste u funkciji zaštite zdravlja i opšte bezbednosti i zaštiti životne sredine. Ovaj pravilnik primenjuje se na: poluprovodničke detektore – spektrometre gama zračenja; poluprovodničke detektore – spektrometre alfa zračenja; scintilacione detektore – spektrometre gama zračenja; scintilacione detektore – spektrometre alfa zračenja; plastične scintilacione brojače; tečne scintilacione brojače i proporcionalne brojače ("Sl. glasnik RS", 2017).

U daljem tekstu biće stavljena akcenat na poluprovodničke i scintilacione detektore, jer će samo oni biti korišćeni u eksperimentalnom delu rada. Biće iznete opšte činjenice o detekcionim sistemima, koje važe za sve detektore tih vrsta, a u eksperimentalnom delu biće konkretno reči o korišćenim brojačima ionizujućeg zračenja i njihovim karakteristikama (tip, model, efikasnost,...).

2.1.1 Scintilacioni detektori

Scintilacija ili **svetlucanje** je pojava u nuklearnoj fizici i fizici elementarnih čestica da neki materijali (scintilatori), kada su ozračeni ionizujućim zračenjem stvaraju fotone vidljive svetlosti. Materijali mogu biti u rasponu od relativno malog do velikog atomskog broja Z . Stoga su pogodni i za detekciju nanelektrisanih čestica (alfa-čestice, beta-čestice), ali i za vrlo prodornih gama zraka. Naime, upadno zračenje ionizuje i pobuđuje atome (Dželalija, 2011).

Proces koji se dešava u samom materijalu je proces ekscitacije kojim se elektroni pomeraju na više energijske nivo. Do eksitacije može doći kada materijal apsorbuje energiju ionizujućeg zračenja. Scintilacije (emisija vidljive svetlosti) se javljaju prilikom suprotnog procesa-de-eksitacije. Broj emitovanih kvanta svetlosti zavisi od tipa zračenja i materijala scintilatora. Dakle, ozračeni materijali koji emituju vidljivu svetlost nazivaju se scintilatori (Marinkov, 2010).



Slika 2.3 Scintilacija kao podvrsta luminescencije

Scintilacije su veoma važan mahanizam za detekciju zračenja. Scintilaciona svetlost se relativno jednostavno i efikasno može konvertovati u električni signal. Kada čestica ili foton deponuju energiju na scintilacionom materijalu, signal koji se dobija je proporcionalan deponovanoj energiji (Leo, 1994).

Materijali koji se koriste u scintilacionim detektorima moraju imati sledeće osobine:

- Moraju imati sposobnost da konvertuju veliku količinu apsorbovane energije u svetlost,
- Vreme koje protekne između ekscitacije elektrona i emisije svetlosti mora biti veoma kratko,
- Mora postojati mogućnost da svetlosni fotoni koji se dobijaju mogu da prođu kroz materijal.

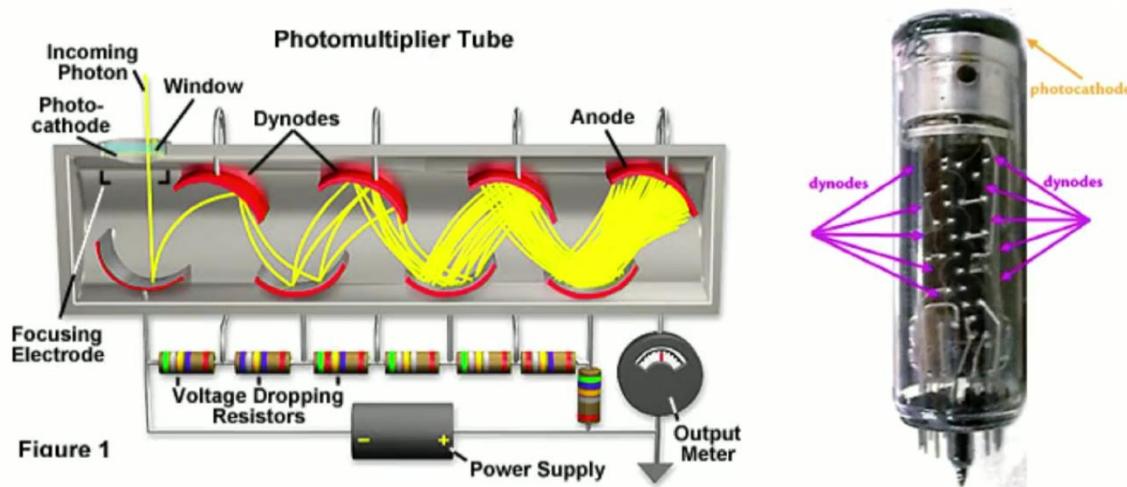
Scintilatori mogu biti napravljeni od organskih ili neorganskih materijala. Materijali koji imaju svojstvo da su prozirni za sopstvenu svetlost su organski scintilatori, kao na primer: naftalin, antracen, stilben i slično. Navedeni materijali se pojavljuju u kristalnoj formi. Postoje i neke tečne supstance koje se mogu upotrebiti kao scintilatori. Najpoznatije od njih su ksilen i toluen. I kristalni i tečni scintilatori su ugljovodonična jedinjenja (Krmar, 2013).

Organski scintilatori mogu biti rastvoreni u čvrstoj prozirnoj plastiци. Na taj način se dobijaju plastični scintilatori. Druga mogućnost je da se scintilacioni materijali rastvaraju u organskim tečnostima. Ovako se dobijaju tečni scintilatori (ili kako se još nazivaju scintilacioni kokteli) (Leo, 1994).

Organske tečnosti su tečni rastvori jednog ili više organskih scintilatora u organskom rastvaraču. Scintilacioni proces im je isti kao i kod kristalnih materijala, ali je mehanizam apsorpcije energije drugačiji. U rastvorima, jonizacionu energiju uglavnom upija rastvarač i potom je prosleđuje rastvorenom delu rastvora. Ovaj proces je veoma brz sa velikom efikasnošću (Leo, 1994).

Detektori koji koriste ovakav mehanizam su upravo scintilacioni detektori. Elektronski dodaci koji se koriste da bi se od svetlosnog signala (scintilacija) dobio električni signal zovu se fotomultiplikatori (zgled jednog je prikazan na slici 2.4). Fotomultiplikator je specijalna elektronska cev, a sastoji se od fotokatode, sistema dinoda i anode. Katoda je vezana za negativni, a anoda za pozitivni pol izvora visokog napona. Elektron izbačen iz katode ubrzava se, tj. raste mu kinetička energija do te vrednosti da iz sledeće dinode

izbac i dva i više elektrona, daljim ubrzavanjem broj elektrona se drastično umnožava i na kraju stiže do anode, što za posledicu ima drastično pojačan signal, što pored konverzije svetlost-elektron predstavlja glavnu ulogu fotomultiplikatora, ma o kom tipu scintilacionog detektora da se radi (Marinkov, 2010).



Slika 2.4 Izgled fotomultiplikatora

Scintilacioni detektori imaju široku primenu, ne samo u naučno-istraživačkom radu nego i u savremenoj praksi. Zastupljenost u ovim razmerama posledica je sledećih svojstava ovih uređaja (Marinkov, 2010):

- Vrlo velika efikasnost u odnosu na gasne brojače (ovo naročito važi za gama zračenje visokih energija);
- Velika brzina i kratko vreme razlaganja;
- Rade i kao spektrometri čestica i kao spektrometri za određivanje energije nuklearnih zračenja;
- Velika mogućnost izbora različitih geometrijskih formi, kao i kombinacija u izvođenju eksperimenta.

Prednost ovih detekcionih sistema u odnosu na poluprovodničke jeste nepotrebno hlađenje, a glavna manja loša rezolucija dobijenog spektra.

U eksperimentalnom delu rada velika se pažnja posvećuje tečnoj scintilacionoj spektrometriji (LSC). Sam scintilacioni spektrometar **Quantulus 1220TM** koji je korišćen za merenja biće opisan u eksperimentalnom delu rada, ali svakako osnovni princip rada je opisan o ovom poglavљу.

2.1.2 Poluprovodnički detektori

Zbog svojih povoljnih osobina, poluprovodnički detektori su našli primenu u merenju mnogih radijacionih pojava. Energetska rezolucija poluprovodničkih detektora je značajno veća u odnosu na druge tipove detektora, a dobra vremenska rezolucija i prilagodljiva efektivna gustina medijuma koji se koristi, takođe doprinose širokoj primeni ovog tipa detektora. Mana je potreba za konstantnim hlađenjem i sklonost ka propadanju usled izloženosti jonizujućem zračenju (Debertin & Helmer, 1988).

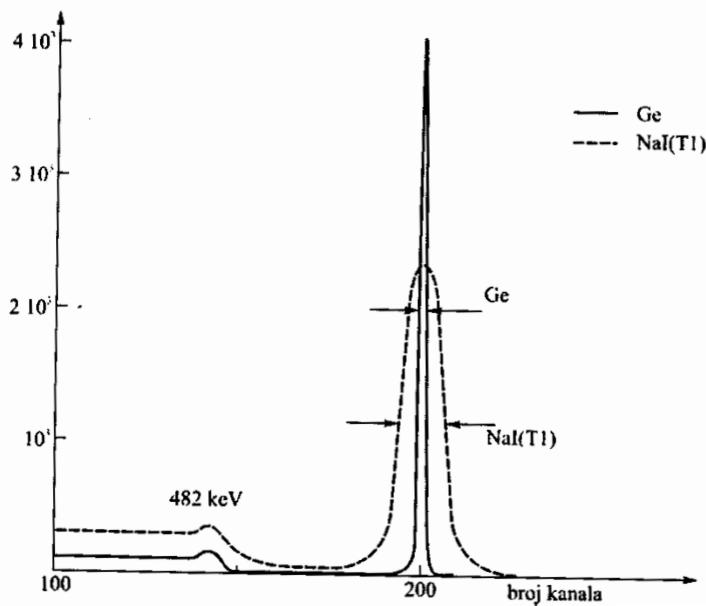
Poluprovodnički materijali su kristalnog karaktera. Najčešće se prave izvlačenjem iz rastopa kao monokristali. Opštepozнато je postojanje dve grupacije poluprovnika; p tipa i n tipa. Jedni se od drugih razlikuju po tome koji su im glavni nosioci nanelektrisanja. Kod poluprovodnika n tipa glavni nosioci nanelektrisanja su elektroni, a kod p tipa su šupljine. Ako u poluprovodniku nema nekih „stranih“ atoma onda se takvi poluprovodnici zovu čistim. Širina zabranjene zone kod poluprovodnika je reda veličine 1 eV. Najpoznatiji čisti poluprovodnici su Si i Ge (silicijum i germanijum). Čisti poluprovodnici se najčešće dopiraju odgovarajućim primesama čime bi se snizila sama žirina zabranjene zone i formirali posebni nivoi blizu provodne, odnosno valentne zone, što je osnovni princip rada ovih detektora (Leo, 1994) .

Dejstvom gama zračenja na ovakve detekcione sisteme stvaraju se slobodni nosioci nanelektrisanja, odnosno parovi elektron-šupljina koji usmereni spoljašnjim električnim poljem daju signal na izlazu.

Prednost poluprovodničkih detektora u odnosu na gasne detektore je u tome što imaju bolju energetsku rezoluciju i manjih su dimenzija. Aktivna zapremina poluprovodničkih detektora je oblast prostornog nanelektrisanja $p - n$ spoja, u kojoj ionizacijom nastaju parovi elektron - šupljina. Osnovni električni signal detektora nastaje njihovim kretanjem u električnom polju (L'Annunziata, 1998).

Poluprovodničke detektori se razlikuju po elementu od kojeg je napravljena aktivna sredina odnosno kristal. Detektori mogu biti silicijumski i germanijumski, a na osnovu primesa koje se dodaju radi poboljšanja karakteristika kristala, razlikuju se Si(Li), Ge(Li) i čisti Ge detektori. Germanijumski detektori su značajno pogodniji za detekciju gama zračenja od silicijumskih. Njihova prednost ogleda se, pre svega, u značajno većem rednom broju ($Z_{Si} = 14, Z_{Ge} = 32$) (L'Annunziata, 1998). Zbog ove činjenice presek za fotoefekat je oko 60 puta veći kod germanijuma nego kod silicijuma. Za dati spoljašnji napon veća debljina osiromašene oblasti (reda centimetra) se može postići samo ako je koncentracija nečistoća (pre dopiranja primesama) veoma mala. To se može postići kompenzacijom pomoću nanošenja Li jona na Ge kristal pri čemu se formiraju Ge(Li)-detektori. Smanjenjem koncentracije nečistoća zonskim rafiniranjem dobija se i tzv. ultra-čisti (high purity) germanijum. Od ovakvog germanijuma se formiraju HPGe (***High Purity Germanium***) detektori (Nikolić, 2015) . Ovi detekcioni sistemi imaju lošiju relativnu efikasnost u odnosu na scintilacione detektore, ali dosta bolju rezoluciju što je ilustrovano na slici 2.5, a to se objašnjava time da se prilikom detekcije neke čestice u poluprovodniku stvara više nanelektrisanja nego u gasnom ili scintilacionom brojaču,

jasno je da će vrednost energije čestice izmerene poluprovodničkim brojačem biti namanje podložna neodređenosti statičkog karaktera (Krmar, 2013).

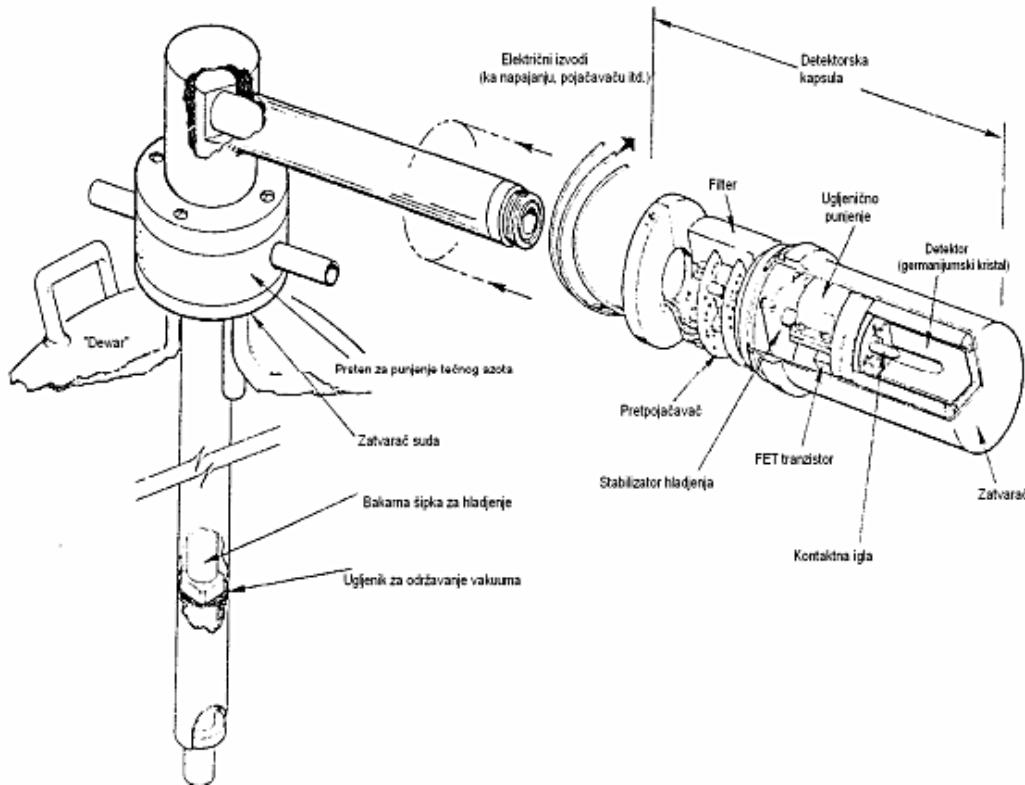


Slika 2.5 Poređenje rezolucije poluprovodničkog i scintilacionog NaI detektora (Krmar, 2013).

Poluprovodnički detektori se izrađuju za različite namene u različitim oblicima. Poluprovodnički kristali se prave u dimenzijama od veličine novčića, pa sve do par stotina kubnih centimetara. Zbog dobre rezolucije se najčešće koriste u gama spektrometriji, mada se mogu koristiti i za detekciju drugih vrsta zračenja. S obzirom da za stvaranje parova elektron-šupljina nije potrebna visoka energija, na sobnoj temperaturi bi se pojavio visok šum niskih naponskih signala koji bi poticali od nanelektrisanja stvorenog i bez prisustva zračenja. Iz tog razloga se poluprovodnički kristal tokom rada hlađi do temperature tečnog azota koja iznosi 77 K (Krmar, 2013). Na slici 2.6 je prikazana opšta konfiguracija HPGe detektora koji se koristi za gama-spektrometrijska merenja. Detektor je postavljen na jedan kraj metalne (bakarne) šipke dok se drugi njen deo potapa u kriostat napunjen tečnim azotom čime se obezbeđuje efikasno hlađenje detektora. Pretpojačavač se montira direktno na kriostat jer je važno da bude što bliže detektoru da bi se hladilo zajedno sa njim i da bi se tako smanjili elektronski šum i kapacitivno opterećenje na ulazu (Debertin & Helmer, 1988), (Knoll, 1979), (L'Annunziata, 1998).

HPGe detektori funkcionišu u takozvanom impulsnom režimu, što znači da amplituda svakog strujnog impulsa nosi informaciju o nanelektrisanju koje se generiše prilikom interakcije posmatranog zračenja sa materijom unutar detektora. Distribucija amplituda pulseva je fundamentalna informacija koja se koristi za izučavanje osobina upadnog zračenja kao i osobina samog detektora. Pri posmatranju spektra, uočavaju se pikovi koji predstavljaju amplitude koje su najzastupljenije, a pošto je amplituda impulsa direktno

proporcionalna energiji upadnog fotona, to govori o prirodi upadnog zračenja i može se povezati sa elementom koji je izvor zračenja kao i sa njegovom koncentracijom i aktivnošću (Nikolić, 2015).



Slika 2.6 Opšta konfiguracija HPGe detektor (Nikolić, 2015)

HPGe detektori su dostupni sa različitim veličinama, sa različitim geometrijama (planarni, koaksijalni). Ova vrsta detektora se razlikuje i po veličini i izboru prozora (Al, Be) (L'Annunziata, 1998).

Dakle, poluprovodnički detekcioni sistemi imaju daleko bolju rezoluciju (FWHM) od scintilacionih, ali im je zato lošija efikasnost⁷ detekcije.

⁷ U eksperimentalnoj fizici dostupni su različiti termini koji se podvode pod *efikasnost*. U gama spektrometriji uobičajeni su sledeći pojmovi vezani za efikasnost: 1) **Relativna efikasnost** (to je nominalna performansa detektora koja predstavlja odnos efikasnosti detekcije gama zraka od 1332 keV iz ^{60}Co , na rastojanju 25 cm od detektora, prema efikasnosti standardnog scintilacionog detektora sa kristalom NaI(Tl) veličine 3"x 3"); 2) **Apsolutna efikasnost** (to je odnos površine vrha ukupne energije u mernom spektru prema broju gama zraka emitovanih iz izvora. Iz nje se određuje aktivnost radionuklida u izvoru, a ona, pored ostalog, zavisi i od geometrijske postavke izvor-detektor.); 3) **Apsolutna totalna efikasnost** (to je odnos odbroja na ma kom mestu u spektru prema broju gama zraka emitovanih iz izvora. Ovde se uzima u obzir vrh ukupne energije i sve nekompletne apsorpcije predstavljene komptonskim kontinuumom.); 4) **Sopstvena efikasnost** (to je odnos odbroja u spektru prema broju gama zraka koji padnu na detektor. Može se definisati kao sopstvena efikasnost vrha ukupne energije ili kao sopstvena totalna efikasnost. Ova efikasnost je osnovni parametar detektora i nezavisna je od geometrije izvor-detektor) (Slivka, Bikit, Vesović, & Čonkić, 2000).

2.2 Statističke varijacije u brojanju rezultata

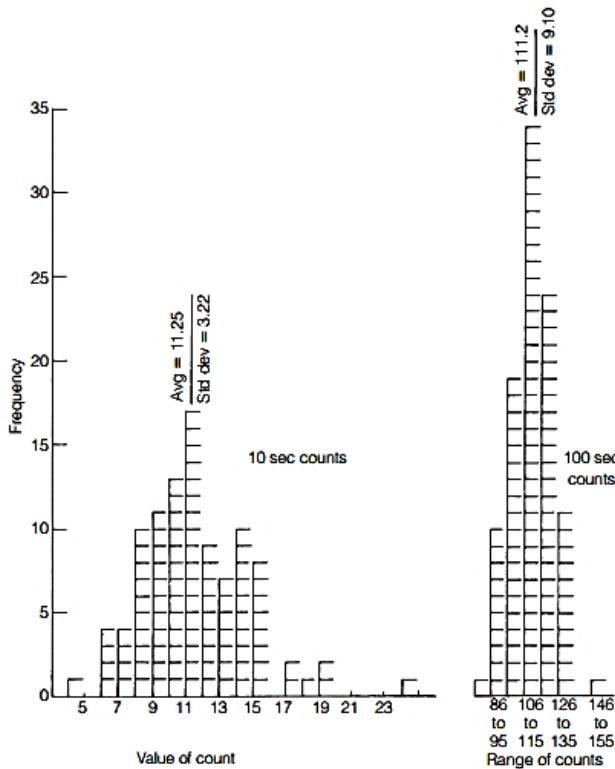
2.2.1 Prirodna distribucija odbroja

Često je potrebno proceniti raznovrsnost mnogih uzastopnih odbroja za isti uzorak, ovde će biti razmotreni neki stvarni podaci. Rezultati odbroja za 10 sekundi i 100 sekundi za isti uzorak dati su u Tabeli 2.1. Ako je potreban dodatan odbroj uzorka, verovatno će se dobiti jedna od vrednosti datih u tabeli. Postoji mogućnost dobijanja vrednosti izvan granica dobijenih rezultata, ali je verovatnoća da se to desi veoma mala (Shapiro, 2002).

Koje vrednosti bi bile najverovatnije mogu se naći u ponovljenim odbrojima. To se može saznati kroz predstavljanje podataka na način koji pokazuje učestalost, gde su dobijene različite vrednosti odbroja. Histogram raspodele sa podacima iz Tabele 2.1 je prikazan na slici 2.7. Vidi se da distribucijom može biti okarakterisana najverovatnija vrednost, a da veća odstupanja bilo koje vrednosti od najverovatnije, daju manju šansu za tačnost odbroja (Shapiro, 2002).

Tabela 2.1 Rezultati ponavljanja odbroja radioaktivnog uzorka

10-second counts					100-second counts				
7	9	11	13	9	120	92	108	107	117
13	13	9	11	11	98	146	117	112	92
11	6	11	15	15	131	86	90	109	112
8	9	13	12	19	119	123	88	101	112
18	11	9	12	9	127	104	85	111	99
12	10	10	12	10	114	118	133	127	107
11	17	8	15	11	96	115	118	113	120
15	24	7	8	14	119	109	97	110	94
12	11	15	10	8	114	123	114	123	97
14	11	10	4	11	121	80	98	108	126
8	8	9	13	8	97	131	97	105	125
15	11	6	11	17	93	120	112	115	118
14	14	14	8	12	130	121	111	110	114
8	10	10	9	15	114	101	117	109	122
12	12	9	14	19	113	108	106	128	122
9	14	6	6	13	100	90	126	111	94
11	11	8	14	10	115	104	119	105	102
10	10	10	14	7	103	98	105	120	108
7	9	11	13	11	116	123	130	109	110
14	10	15	12	10	107	112	122	109	131



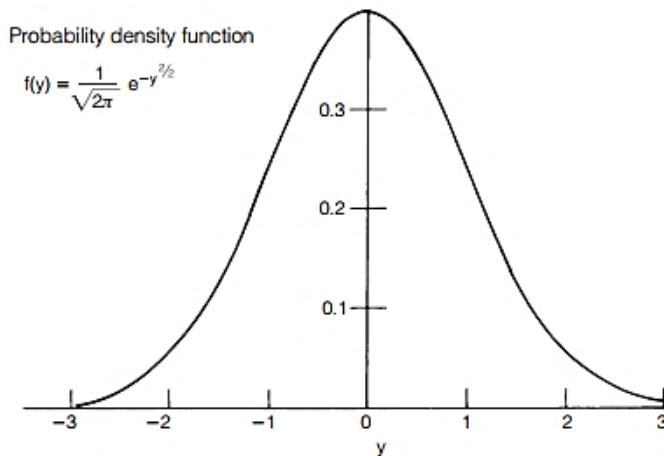
Slika 2.7 Histogram distribucije frekvencije za 100 ponovljenih odbroja za dva različita perioda brojanja

Ako se napravi niz ponovljenih merenja i rezultati se razlikuju, oni obično u proseku daju "najbolju" vrednost. Kako se broj ponavljanja odbroja povećava, prosečna vrednost prilazi vrednosti koja se naziva *pravom*. U idealnom slučaju, to je granica koja se želi odrediti kada je radioaktivni uzorak u pitanju. Međutim, radioaktivna ispitivanja generalno se sastoje od jednog merenja tokom ograničenog vremenskog intervala i pružaju samo procenu istinite srednje vrednosti odbroja za uzorak. Shodno tome, za rezultat merenja treba odrediti stepen poverenja za procenjenu vrednost odbroja, odnosno mernu nesigurnost sa kojom je iskazan dobijeni eksperimentalni rezultat (Shapiro, 2002).

2.2.2 Normalna kriva greške – dobro rešenje za distribuciju odbroja

Histogram na slici 2.7 pri ponovljenom odbroju za aritmetičku sredinu od 111,2, može da se uklopi lepo sa normalnom krivom raspodele greške. Histogram za distribuciju srednje vrednosti od samo 11,25 odbroja pokazuje jasnu asimetriju, pa je odgovarajuća greška uvedena da ga zameni sa simetrično normalnom krivom. Asimetrija postaje izraženija jer srednja vrednost opada, sami rezultati odbroja od radioaktivnog izvora potiču iz slučajnih procesa čija je verovatnoća pojave veoma mala i konstantna (λ -konstantna i karakteristična za svaki radioaktivni izvor, iskazana je relacijom 1.1). Kao rezultat toga, iz promenljivosti u

ponovljenim odbrojima sledi Poasonova, a ne normalna raspodela. Dok je Poasonova raspodela asimetrična za mali broj posmatranih događaja (to jest, manje od 16), kako se broj događaja povećava raspodela se brzo približava obliku normalne distribucije. Svojstvo Poasonove distribucije je da je srednja vrednost jednaka kvadratu standardne devijacije. Samim tim i normalna kriva može biti fitovana podacima samo ako je dat jedan parametar, aritmetička sredina. Standardna devijacija se dobija jednostavnim uzimanjem kvadratnog korena srednje vrednosti. Pozivajući se na merenja prikazana na slici 2.7, standardna devijacija za merenje od 10 sekundi su izračunate za normalnu distribuciju sa srednjom vrednosti od 11,25 i iznosi 3,35, a standardna devijacija za 100 sekundi merenja, izračunata za normalnu distribuciju sa srednjom vrednosti 111,2 iznosi 10,5. Ove vrednosti su u dobroj saglasnosti sa vrednostima 3,22 i 9,10 izračunatih za seriju od 100 merenja. Od teorije normalne distribucije, se očekuje da se vrednosti razlikuju za 32% od srednje i za više od jedne standardne devijacije. Ovo očekivanje se može uporediti sa stvarno nađenim brojevima, koji su 23 i 37 od 100, određenih za 10 i 100 sekundi merenja, respektivno (Shapiro, 2002).



Slika 2.8 Normalna distribucija (Gausova distribucija)

Očigledno se najbolja procena vrednosti može dobiti ako se napravi mnogo ponavljanja merenja. To je najbolje kada nisu u pitanju duga merenja odbroja. Drugo, poznato je da se srednja vrednost verovatno razlikuje od izmerene vrednosti, ali se mogu odrediti granice unutar kojih se prava srednja verovatno nalazi. Verovatnoća da prava srednja vrednost leži u granicama oko izmerene vrednosti se određuje iz normalne krive greške (Gausove raspodele-slika 2.8), povučene sa srednjom vrednošću jednakom izmerenom odbroju (N) i standardnoj devijaciji (s) – koja je jednak kvadratnom korenju izmerenog odbroja, $s = \sqrt{N}$. Postoji 68% verovatnoće da prava srednja vrednost leži između $N + \sqrt{N}$ i $N - \sqrt{N}$. Postoji 95% verovatnoće da prava srednja vrednost leži između $N + 1,96\sqrt{N}$ i $N - 1,96\sqrt{N}$, i postoji 99% verovatnoće da prava srednja vrednost leži u intervalu između $N + 2,58\sqrt{N}$ i $N - 2,58\sqrt{N}$ (Shapiro, 2002).

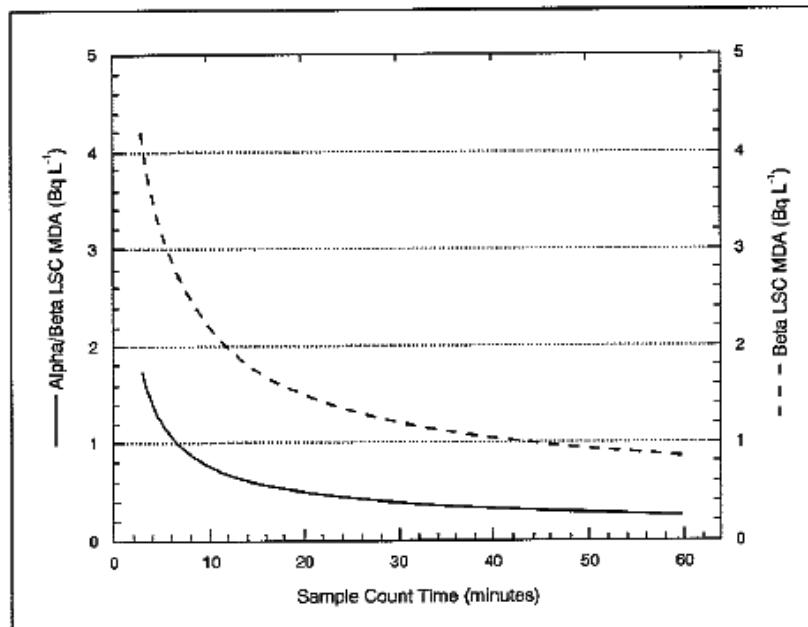
Koristeći statističku jezik, može se reći: 68 % intervala pouzdanosti (poverenja) je jednako izmerenoj vrednosti $\pm 1s$; interval poverenja od 95 % jednak je izmerenoj vrednosti $\pm 1.96s$; interval pouzdanosti od 99 % je jednak izmerenoj vrednosti $\pm 2.58s$, gde s predstavlja standardnu devijaciju (Shapiro, 2002).

2.2.3 Minimalna detektibilna aktivnost (MDA)

Kako neki autori navode u (Passo & Cook, 1994) LSC tehnikom (tehnika tešne scintilacione spektrometrije) se minimum koncentracije aktivnosti koju je moguće detektovati za radon 222 u vazduhu može spustiti do nivoa od $2 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$, dok se u vodi može detektovani $0,37 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Željeno vreme merenja prisustva određenog radionuklida diktira i to koliko se niska granica može detektovati, dakle vreme je odlučujući i glavni faktor. Na primer, autor (Lowry, 1991) dobio je granicu detekcije od $1,65 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ za 60 minuta merenja radona 222 u vodi LSC tehnikom sa poverenjem od 95%.

Na slici 2.9 data je zavisnost detektovane koncentracije aktivnosti za alfa/beta i samo beta aktivnost primenom LSC merene tehnike. Sveobuhvatno, zajedničko svojstvo jeste da se MDA smanjuje po eksponencijalnom zakonu i za prilično duga merenja postaje praktično konstantna.

Opadanje granice detekcije (MDA) sa vremenom predstavlja trend i kod gama i alfa spektrometrije. Tako da vreme merenja govori koliko se niska koncentracije aktivnosti može postići kao što je eksperimentalno dato u radu (Guogang Jia, Jing Jia,, 2012). Glavni parametri koji osim vremena brojanja određuju MDA su i količina uzorka, *background* i efikasnost detekcije (Currie, L.A., 1968).



Slika 2.9 Zavisnost minimalne detektibilane aktivnosti (MDA) od vremena merenja, poređenje alfa/beta i beta LSC merne tehnike (Passo & Cook, 1994)

II EKSPERIMENTALNI DEO

3.1 Uvodne napomene

U ovom delu rada, koji treba da proistekne iz prethodnog teorijskog uvoda biće opisano tri merne tehnike i četiri korišćene metode za ispitivanje ^{226}Ra u vodi. Posle opisa svake korišćene metode biće prikazani eksperimentalni rezultati.

Uzorci koji su korišćeni u ispitivanjima nisu “realni” uzorci vode, već je u destilovanu vodu ($\text{pH} = 7$), dodata određena količina standarda ^{226}Ra . Značaj se pre svega pridodaje testiranju ispravnosti metoda, a ne samim uzorcima. Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra su napravljene tako da je jedna blizu granične, odnosno zakonske ($0,49 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$), a ostale su dosta više. Tokom pripreme uzorka u određenoj zapremini dodata je koncentrovana azotna kiselina (HNO_3) da se radionuklidi ^{226}Ra ne bi lepili za zidove suda u kome se nalaze, i tako umanjivali konačni rezultat. Koncentrovana azotna kiselina je dodata u takvom odnosu da pH vrednost bude manja od 2 (Sturchio, N.C., 1990).

Pre početka merenja čekalo se približno mesec dana da bi nastrupila sekularna radioaktivna ravnoteža ^{222}Rn i ^{226}Ra (6-7 perioda poluraspada ^{222}Rn) kao u radu (Hamzah, Saat, & Kassim, 2011). Metodom gama spektrometrije je tokom tih mesec dana praćena sekularna radioaktivna ravnoteža što će biti izloženo u daljem tekstu.

Merne tehnike koje su korišćene za ispitivanje ^{226}Ra , odnosno one čiji će rezultati biti poređeni su:

- 1) Gama spektrometrija **K detektorom**;
- 2) Alfa spektrometrija detektorom **RAD 7**;
- 3) Alfa/beta spektrometrija detektorom **Quantulus 1220TM**;

U okviru ove merne tehnike ravnijene su dve metode:

-**EPA 913.0** metoda za određivanje radona (radijuma) u vodi;

-**ASTM D 7283-06** standardna metoda za određivanje ukupne alfa/beta aktivnosti.

Prva tehnika se izvodi poluprovodničkim HPGe detektorom, druga „solid state“ poluprovodničkim silicijumskim detektorom, a treća tehnika koristi tečni scintilacioni detektor. Za svaku od navedenih tehnika i njihovih metoda takođe je snimljena i MDA (Minimalna Detektibilna Aktivnost) u zavisnosti od vremena. Za svaku metodu urađena je i korekcija rezultata uz diskusiju.

Posle prikazanih rezultata izmerenih i korigovanih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u vodi biće dat rezime u vidu tabela i grafika na osnovu kojih će se doneti zaključci vezani za samo poređenje i ispravnost korišćenih metoda.

3.2 Priprema uzorka

Pre same pripreme uzorka potrebno je odrediti pogodnu ambalažu i pogodnu zapreminu iste. Potrebno je odjednom pripremiti uzorke za sve metode merenje sa tačno određenom koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra (ako bise za svaku metodu posebno pravili uzorci iste koncentracije aktivnosti unosi se dodatna greska, pipetiranja, i sl.). Uzorci su "spajkovani" u plastične flaše od 2 l i 1,5 l. Napravljen je šest uzorka sa razlicitim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra kako je prikazano u Tabeli 3.1. Kao *blank* korišćena se destilovana voda u koju je dodat standard ^{226}Ra .

Kao što je u uvodnom delu već rečeno napravljen je jedan uzorak sa veoma niskom koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra koja iznosi $0,3967 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, a ostali imaju znatno više koncentracije spajkovanog radijuma. Korišćen je standard Češkog instituta za metrologiju (*Czech Metrology Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation*) koji u 250 ml sadrži rastvoreno $271,1 \text{ ng } ^{226}\text{Ra}$. Njegova koncentracija aktivnosti iznosi $39,667 \text{ Bq}\cdot\text{ml}^{-1}$ na dan 1.10.2013.godine. Odmerena zapremina ^{226}Ra i azotne kiseline (HNO_3) za svaki uzorak dati su u Tabeli 3.1.

Tabela 3.1 Pripremljeni uzorci ^{226}Ra koji su korišćeni u daljim merenjima

Red. broj uzorka	Referentna konc. aktivnosti C_0 [$\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$]	Zapremina dodatog standarda ^{226}Ra [μl]	Zapremina pripremljenog uzorka [l]	Zapremina dodate kiseline (HNO_3) [ml]
1.	$0,397 \pm 0,002$	20	2	1,4
2.	$1,587 \pm 0,008$	80	2	1,4
3.	$3,97 \pm 0,02$	150	1,5	1,1
4.	$5,95^8 \pm 0,03$	300	2	1,4
5	$7,93^9 \pm 0,03$	400	2	1,4
6.	$9,92 \pm 0,05$	500	2	1,4

Nakon pripreme uzorka broj 4 čija je koncentracija $5,95 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ odmah je sisan u Marineli posudu, i nakon 3 sata meren na gama spektrometru. Tako je narednih mesec dana praćena sekularna radioaktivna ravnoteža kod ovog uzorka direktnom metodom gama spektrometrije.

⁸ Uzorak broj 4 koncentracije aktivnosti $(5,95 \pm 0,03) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ korišćen je samo za gama spektrometrijska i alfa spektrometrijska merenja detektorom RAD7.

⁹ Uzorak broj 5 koncentracije aktivnosti $(7,93 \pm 0,03) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ korišćen je samo za merenja metodom tečne scintilacione spektrometrije (LSC) – spektrometrom Quantulus 1220TM.

3.3 Tehnike i metode za ispitivanje ^{226}Ra u vodi

3.3.1 Gama spektrometrija

Niske aktivnosti u uzorcima iz životne sredine se mogu detektovati samo pomoću izuzetno osjetljivih instrumenata, pa se za ispitivanje radioaktivnosti najviše koristi gama spektrometrija sa poluprovodničkim detektorima, koja omogućava identifikaciju i kvantitativno određivanje velikog broja radionuklida - gama emitera u raznovrsnim matricama. Visoka rezolucija poluprovodničkih detektora omogućava relativno brzu i preciznu identifikaciju radionuklida i određivanje njihove aktivnosti na principu konvertovanja upadne energije gama zračenja u električne signale različite visine. Danas gama spektrometrija predstavlja najrasprostranjeniju nuklearnu analitičku tehniku u raznim oblastima istraživanja: monitoring nuklearnih postrojenja, medicinska fizika, nuklearna medicina, radioekologija, ispitivanje materijala, geologija, industrija, poljoprivreda, biofizika i sl. (Forkapić, 2013).

Još jedna od prednosti gama spektrometrije u odnosu na ostale analitičke nuklearne tehnike je nedestruktivna i jednostavna priprema uzorka. Alfa spektrometrija, na primer zahteva složenu i dugotrajanu proceduru pripreme uzorka u obliku veoma tankog sloja ili hemijskih rastvora sa odgovarajućim scintilatorom. Tehnika gama spektrometrije je danas dominantna univerzalna tehnika za merenje koncentracije jezgara gama emitera, pretežno baš zbog toga jer se prihvatljivi pragovi detekcije mogu postići bez ikakvog hemijskog tretmana uzorka kao što su separacija, uparanje, i sl. (Forkapić, 2013) .

Gama zračenje pokriva opseg energija od 30 keV do 3MeV. U tom opsegu se, putem interakcija zračenja sa materijom detektora, može formirati spektar zračenja, na osnovu kojeg se vrši identifikacija radionuklida od kojih zračenje potiče kao i njihova koncentracija u ispitivanom materijalu (Nikolić, 2015). Dakle, ova metoda koristeći visoko rezolucioni poluprovodnički germanijumski detektor koji ima sposobnost da proceni čega to od radioaktivnih čestica ima u uzorku i u kolikoj meri, što podrazumeva kvalitativnu i kvantitativnu procenu. Metod brojanja i identifikacije se zasniva na tri dobropoznata efekta koje radioaktivno zračenje može da izazove pri interakciji sa materijom kroz koju se prostire (monokristal germanijumskog detektora); fotoefekat, Komptonov efekat i kreacije parova.

Cilj gama spektrometrijskog merenja je određivanje energije i broja fotona koje emituje izvor odnosno uzorak. U mnogim primenama ova informacija se koristi da se identifikuju radionuklidi prisutnih u izvoru i da se odrede aktivnosti pojedinih komponenata (Slivka, Bikit, Vesović, & Čonkić, 2000).

Sadržaj radionuklida u uzorcima je meren korišćenjem HPGe ORTEC GMKS gama spektrometra, nominalne efikasnosti 35% i rezolucije (FWHM) od 1,77 keV. Zaštita detektora je izrađena od olova debljine 12 cm. Gama spektri se prikupljaju i analiziraju korišćenjem Canberra Genie 2000 softvera. Sve merne nesigurnosti su predstavljene na nivou poverenja od 95% kao što je dato i u (Todorović, et al., 2011).

Tabela 3.2 Parametri koji karakterišu poluprovodnički detektor sa oznakom K (Forkapić, 2013)

Proizvodač, godina proizvodnje	Canberra, 2005.
Model, serijski broj	GC3518, 05110
Prepojačavač, kriostat	2002CSL, 7935SL-7
Geometrija	Koaksijalni sa zatvorenik krajem
Orijentacija ose detektora	Proizvoljna, u Pb zaštiti vertikalna
Radna temperatura [K]	77
Radni napon [kV]	4,5
Spoljašnji kontakt	0,9 mm Ge(Li)
Unutrašnji kontakt	0,3 μm Au
Ulagani prozor	1,5 mm Al
Prečnik kristala [mm]	61
Visina kristala [mm]	52
Poluprečnik kristala [mm]	9,0
Visina jezgra [mm]	34
Debljina kućišta [mm]	1,5 mm Al
Relativna efikasnost: nominalna, sertifikovana	35%, 35,6%
Rezolucija na 1332 keV	
FWHM, FWTM [keV]	1,77; 3,29
Odnos P/T	63,2

Izgled gama spektrometrijskog detektora na kom su vršena merenja u Laboratoriji za Nuklearnu fiziku na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu prikazan je na Slici 3.1. Detektor (spektrometar) ima internu oznaku K. Spektrometar sa oznakom K je poluprovodnički HPGe detektor proizvođača Canberra model GC3518.

Kao što se na slici 3.1 može videti detektor K je povezan na modul za digitalnu obradu signala (DSP) InSpector 2000, model 1300 proizvođača Canberra, koji obezbeđuje i visoki napon potreban za rad detekcionog sistema. DSP se napaja jednosmernim naponom iz ispravljača, a u toku rada održava u napunjenom stanju litijum jonsku bateriju, koja omogućava rad detektora i modula na terenu (detektor se veoma lako rasklapa i pogodan je za terenski rad), ili u slučaju nestanka napajanja iz mreže. Preko USB porta DSP modul je povezan na računar kao na Slici 3.1, sa operativnim sistemom Windows XP. Upravljanje funkcijama DSP modula omogućeno je pomoću programa Canberra Genie 2000 v. 3.0 instaliranog na ovom kompjuteru, uključujući upravljanje visokim naponom, sakupljanje, on-line praćenje i analizu spektara u formatu Canberra *.CNF.



Slika 3.1 Gama spektrometrijski sistem sa oznakom K u Laboratoriji za Nuklearnu fiziku PMFa u Novom Sadu

Kada je detektor K u stacionarnoj primeni u laboratoriji, od zračenja okoline zaštićen je olovnom komorom oblika šupljeg cilindra unutrašnjeg prečnika 22 cm i debljine zida 12 cm. Osa detektora je tada vertikalna. Integralna brzina brojanja zračenja okoline u intervalu 30 keV do 3000 keV za detektor K je 2.0 s^{-1} (Bikit I. , et al., 2003).

3.3.1.1 Geometrija izvor – detektor

Kada se za određenu seriju merenja postavi i poveže detektor i odgovarajuća elektronika, mora se doneti odluka o tome kakva geometrija izvora i kakav uzajamni položaj izvora i detektora će biti optimalan za cilj postavljen u toj seriji merenja. Neki primeri su: tačkasti izvor na nekom rastojanju od detektora, izvor u obliku diska, direktno na kapi detektora, boca cilindrične geometrije postavljena direktno na kapu detektora, radioaktivni rastvor smešten u Marineli geometriju (posudu), i sam izvor unutar detektora oblika jame.

Da li će se izvor staviti blizu ili daleko od detektora najviše zavisi od njegove aktivnosti, ali se moraju razmotriti i neki drugi aspekti. Prednosti malog rastojanja izvor-detektor su:

- Veća brzina brojanja za datu aktivnost izvora i otuda:
 - Manji uticaj pozadinskog zračenja okoline;
 - Kraće vreme merenja za zahtevani odbroj u vrhovima, odnosno za zahtevanu statističku nesigurnost;
 - Veći odbroj u vrhovima za dato vreme merenja;

- Mogućnost da se uzme manja količina radioaktivnog materijala date koncentracije aktivnosti i da se tako smanje korekcije na atenuaciju,
- Da se smanji atenuacija fotona u vazduhu, što je od značaja samo za niskoenergetske fotone (Slivka, Bikit, Vesović, & Čonkić, 2000).

Na većim rastojanjima izvora od detektoru prednosti su sledeće:

- Manje korekcije na koincidentno sumiranje,
- Manje korekcije na nasumično sumiranje za datu aktivnost izvora,
- Tačnija procena atenuacije fotona u rasprostranjenim izvorima,
- Manja osetljivost efikasnosti detekcije na male promene oblika izvora i njegovog položaja.

U svakom konkretnom merenju odluka o rastojanju izvor-detektor je neki kompromis. Razumno cilj je da se pojedinačni doprinosi ukupnoj mernoj nesigurnosti usklade tako da imaju uporedive iznose. Ako se prihvati ovakav cilj, mora se odupreti težnji da se izvor postavi što bliže detektoru da bi se optimizovala statistika brojanja. Sasvim je moguće da postavljanje izvora direktno ispred detektora rezultuje vrlo malom nesigurnošću u odboru vrha, recimo manjom od 1%, ali da nesigurnost na koincidentno sabiranje bude mnogo veća. U takvom slučaju, povećanje rastojanja na nekoliko cm može dovesti do manje ukupne nesigurnosti, čak i za isto vreme merenja (Slivka, Bikit, Vesović, & Čonkić, 2000).

Svakako kada se govori o geometriji izvor-detektor kao cilj se postavlja odabir takve geometrije da bi de dobio maksimalan prostorni ugao. Maksimalan efektivni prostorni ugao postiže se u geometrijama u kojim ili izvor opkoljava detektor kada je izvor veliki, ili kada detektor opkoljava izvor kada je izvor mali. Zbog toga se ovakve postavke favorizuju kod merenja niskih aktivnosti. Najveća efikasnost se može postići u geometriji sa detektorima oblika jame. Iako se neki tipovi izvora velike zapremine, na primer, vodenim rastvorima ili organskim materijalima, mogu smanjiti po zapremini isparavanjem rastvarača ili spaljivanjem, ovakvi postupci prekoncentracije predstavljaju dodatni trošak i dovode do rizika da se deo aktivnosti uzorka izgubi. Zbog toga prednost imaju merenja sa ukupnom masom materijala (Slivka, Bikit, Vesović, & Čonkić, 2000).

Geometrija Marinelićeve posude, slika 3.2, predstavlja optimalnu raspodelu za veće količine materijala. U zavisnosti od detektora i količine materijala koja stoji na raspolaganju, menjaće se i optimalne dimenzije i oblik posude. Dimenzije upuštene šupljine treba da odgovaraju kućištu (kapi) detektora, a dubina šupljine ne treba značajno da prevazilazi dužinu detektora (kape). Gornji sloj i bočni sloj radioaktivnog materijala treba da su približno iste debeljine da bi se minimalizovala samoatenuacija i srednja udaljenost zapremine izvora od detektora.

Međunarodna elektrotehnička komisija (IEC) preporučuje dva standardna oblika sa kapacitetima od 0,45 l i 1,00 l. Ako bi se upotrebile veće zapremine rastojanje uzorka od detektoru bi sve više raslo, tako da bi to manje doprinosilo ukupnoj brzini brojanja samog detektora (Slivka, Bikit, Vesović, & Čonkić, 2000). Izgled opisane Marinelićeve posude od 450 ml, slikan iz dva pravca, prikazan je na slici 3.2. Levo na slici 3.2 je prikazan položaj boce kada se stavi na detektor, tada su osa posude i osa detektora paralelne. Desno je

prikazana šupljina u koju naleže kapa detektora. Ovakva Marinelijeva posuda korišćena je u gama spektrometrijskim merenjima.



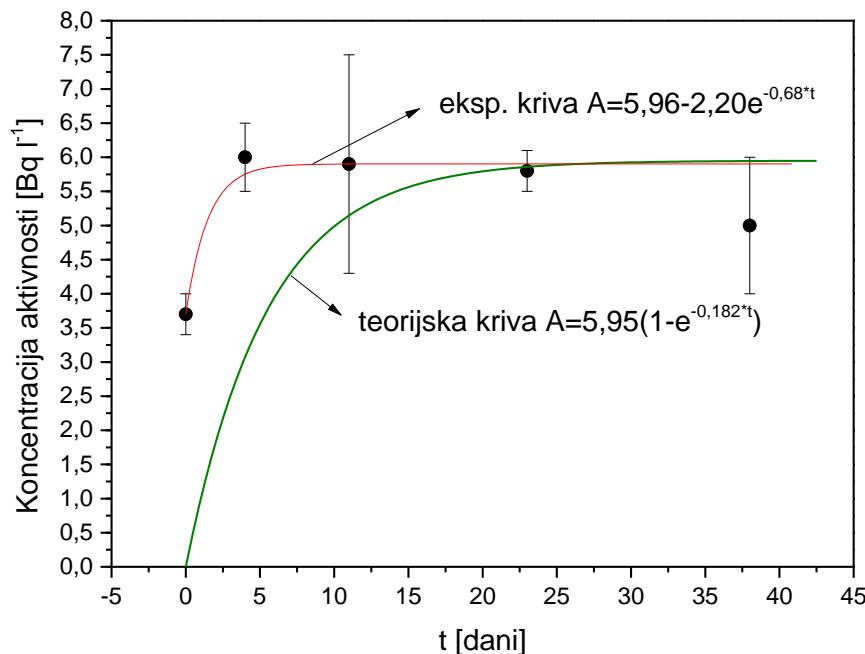
Slika 3.2 Marinelijeva posuda (geometrija), od 450 ml, slikana iz dva pravca, koja je korišćena za gama spektrometrijska merenja

3.3.1.2 Rezultati i diskusija

Uzorci su pripremljeni 16.01.2017., od tog datuma kod uzorka broj 4 ($5,95 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) praćena je sekularna radioaktivna ravnoteža koja nastupa između ^{222}Rn i ^{226}Ra u narednih mesec dana direktnom metodom gama spektrometrije. Dobijeni rezultati prikazani su u Tabeli 3.3 i grafički na slici 3.3, zajedno sa oblikom teorijske krive dobijene na osnovu relacije 1.27. Rezultati su fitovani softverskim programom Origin Pro 9.0 do tačke broj 3 (koordinata (11, 5.9)). Od tačke broj 3 se jasno može videti da je već nastupila radioaktivna ravnoteža, tako da je deo od treće do pete tačke praktično dočrtan pravom $y=5,96$. Merne nesigurnosti kojima su iskazane izmerene vrednosti se kreću u intervalu od 5,17 % kod tačke broj 4 do 27,12 % kod tačke broj 3. Visoku mernu nesigurnost ima i tačka broj pet izmerena 38. dana i iznosi 20 %. Visoke merne nesigurnosti se mogu objasniti kratkim vremenom merenja, što je naznačeno crvenom bojom u Tabeli 3.3. Jasno se uočava neslaganje između teorijske i eksperimentalne krive pogotovu na samom početku merenja, gde teorija predviđa vrednost koncentraciju aktivnosti $0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. Teorija predviđa da sekularna ravnoteža nastupa 23. dana (≈ 6 perioda polurasпадa ^{222}Rn) što se jasno vidi na slici 3.3. Eksperimentalno je dobijeno da sekularna radioaktivna ravnoteža nastupa već šestog dana, odnosno nakon 1,58 perioda polurasпадa ^{222}Rn .

Tabela 3.3 Koncentracija aktivnosti tokom praćenja sek. radioaktivne ravnoteže između ^{222}Rn i ^{226}Ra

Red. broj uzorka	Konzentracija aktivnosti [Bq·l ⁻¹]	Dani od početka merenja	Praćenje sek. rad.	Vreme merenja [s]	Merna nesigurnost [%]
		16.01.2017.	ravnoteže metodom gama- spektrom [Bq·l ⁻¹]		
4.	5.95 ± 0.03	0	3.7 ± 0.3	67178	8,11
		4	6.5 ± 0.5	73963	8,33
		11	5.9 ± 1.6	9616	27,12
		23	5.8 ± 0.3	74501	5,17
		38	5.0 ± 1.0	5000	20,00

**Slika 3.3 Sekularna radioaktivna ravnoteža ^{222}Rn i ^{226}Ra** **Tabela 3.4 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti uzoraka ^{226}Ra metodom gama spektrometrije**

Red. broj uzorka	Referentna konc. aktivnosti C_0 [Bq·l ⁻¹]	Metoda gama- spektrometrije C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Vreme merenja [s]	Merna nesigurnost [%]	C_{exp}/C_0
1.	$0,397 \pm 0,002$	$0,40 \pm 0,24$	63568	60	1,01
2.	$1,587 \pm 0,008$	$1,3 \pm 0,7$	8180,4	53,85	0,82
3.	$3,97 \pm 0,02$	$3,6 \pm 1,5$	5000	44,44	0,91
4.	$5,95 \pm 0,03$	$5,9 \pm 1,6$	9616,4	27,12	0,99
5.	$9,92 \pm 0,05$	$16,8 \pm 0,9$	67660	5,36	1,69

Pošto je ^{226}Ra alfa emiter, ima i jednu karakterističnu gama liniju na 186,25 keV. Koncentracije aktivnosti ovog radionuklida za pet uzoraka određene su na osnovu njegovih potomaka, (koji imaju značajne gama linije), ^{214}Pb (295,22 keV i 351,99 keV) i ^{214}Bi (609,32 keV, 1120,28 keV, 1764,51 keV). Verovatnoće za ove gama prelaze su veoma velike (Kahn, Rosson,, & Cantrell, 1990).

U Tabeli 3.4 su prikazane vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u $[\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}]$ za pet pripremljenih uzorka ^{226}Ra dobijenih metodom gama spektrometrije. Dobijene vrednosti imaju merne nesigurnosti u intervalima od 5,36% do 60%. Uočava se da vreme merenja igra veoma važnu ulogu pri formulisanju konačnog rezultata i njegove merne nesigurnosti. Može se primetiti i to da je za veoma nisku koncentraciju aktivnosti, uzorak broj 1 sa koncentracijom aktivnosti $0,397 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, potrebno veoma dugo merenje ovom metodom i da je i u takvim okolnostima merna nesigurnost za ovaj uzorak bila čak 60% od izmerene vrednosti. Kod uzoraka sa većom koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra , dobijene su manje nesigurnosti, za kraća vremena, pa se može dovesti u vezu koncentracija aktivnosti ^{226}Ra sa očekivanim vremenom merenja. Dakle, što je bila veća koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u uzorku, bilo je potrebno kraće vreme merenja, za manju mernu nesigurnost konačnog rezultata.

Odnosi eksperimentalno dobijenih koncentracija aktivnosti uzoraka i referentnih, (C_{exp}/C_0) su svi približno oko 1 uz veće odstupanje kod uzorka broj 5 kod kojeg je eksperimentalno dobijena 1,69 puta veća vrednost koncentracije aktivnosti. Uzorci broj 2 i 5 imaju najveća odstupanja od jedinice ako je reč o ovom odnosu. Uzorci 1, 3 i 4 imaju relativno prihvatljiva odstupanja u intervalu 0,91 do 1,01. Zbog neslaganja dobijenih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u odnosu na referentne vrednosti koncentracija aktivosti ^{226}Ra , izvršena je korekcija eksperimentalnih rezultata.

3.3.1.2.1 Korekcija eksperimentalnih rezultata

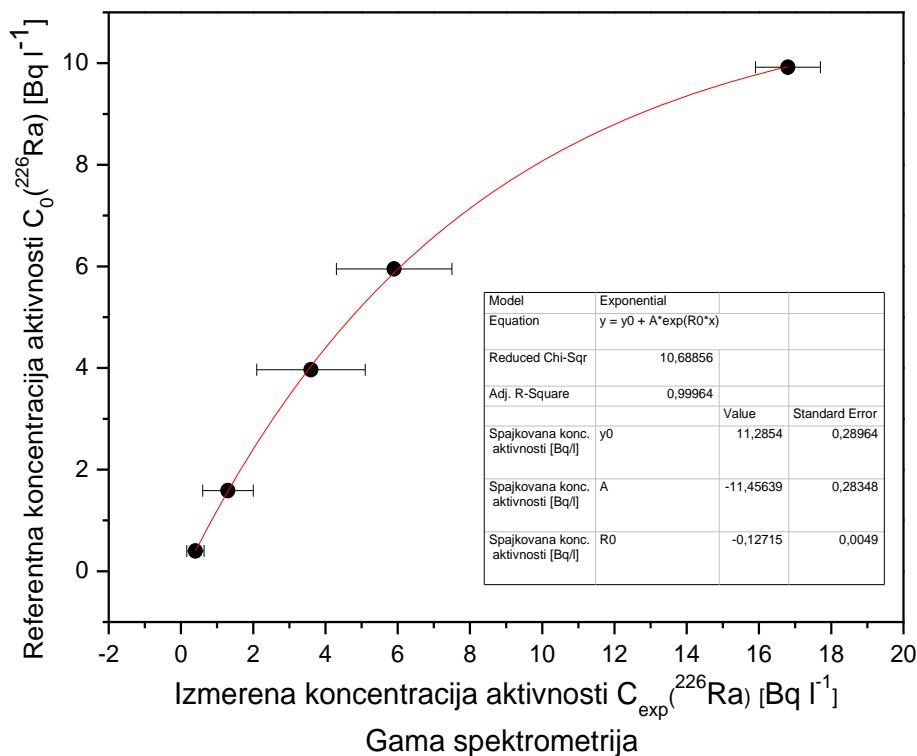
Iz Tabele 3.4 se vidi neslaganje eksperimentalnih rezultata sa referentnim vrednostima standarda ^{226}Ra u uzorcima. Zbog toga je izvršena korekcija eksperimentalnih rezultata. U idealnom slučaju između referentnih i izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra trebala bi da stoji linearna korelacija. Ustanovljeno je da to nije slučaj.

Snimanjem zavisnosti referentne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra $[\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}]$ u odnosu na dobijene eksperimentalne vrednosti metodom gama spektrometrije $[\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}]$, (Tabela 3.4), uočena je eksponencijalna korelacija. Zavisnost je prikazana na slici 3.4.

Rezultati su fitovani korišćenjem programa Origin Pro 9.0. Dobijena zavisnost ima sledeći oblik:

$$y = 11,2854 - 11,45639e^{-0,12715x},$$

gde y predstavlja referentnu koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra u $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, a x dobijen eksperimentalni rezultat ovom metodom, takođe u $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

Slika 3.4 Korelacija između referentnih i izmerenih vrednosti ^{226}Ra metodom gama spektrometrije

Ako se u ovakav oblik funkcionalne zavisnosti ubace eksperimentalni rezultati dobijaju se vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra koje su korigovane prema ovoj korelaciji. Pošto je u pitanju eksponencijalna zavisnost, nije moguće odrediti jedinstven korekcioni faktor kojim bi se korigovale dobijene vrednosti, to bi bilo moguće jedino da je korelacija linearog tipa, što je potvrđeno da nije slučaj. Korigovane vrednosti u odnosu na izmerene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra prikazane su u Tabeli 3.5

Tabela 3.5 Korigovane koncentracije aktivnosti ^{226}Ra gama spektrometrije prema korelacionoj funkciji

Red. broj uzorka	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [Bq·l ⁻¹]	Metoda gama- spektrometrije C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana merna nesigurnost [%]	Korigovana C _{cor} /C ₀
1.	$0,397 \pm 0,002$	$0,40 \pm 0,24$	$0,397 \pm 0,204$	51,39	1
2.	$1,587 \pm 0,008$	$1,3 \pm 0,7$	$1,575 \pm 0,976$	61,97	0,99
3.	$3,97 \pm 0,02$	$3,6 \pm 1,5$	$4,04 \pm 1,82$	45,03	1,02
4.	$5,95 \pm 0,03$	$5,9 \pm 1,6$	$5,88 \pm 1,94$	32,99	0,99
5.	$9,92 \pm 0,05$	$16,8 \pm 0,9$	$9,93 \pm 1,07$	10,75	1

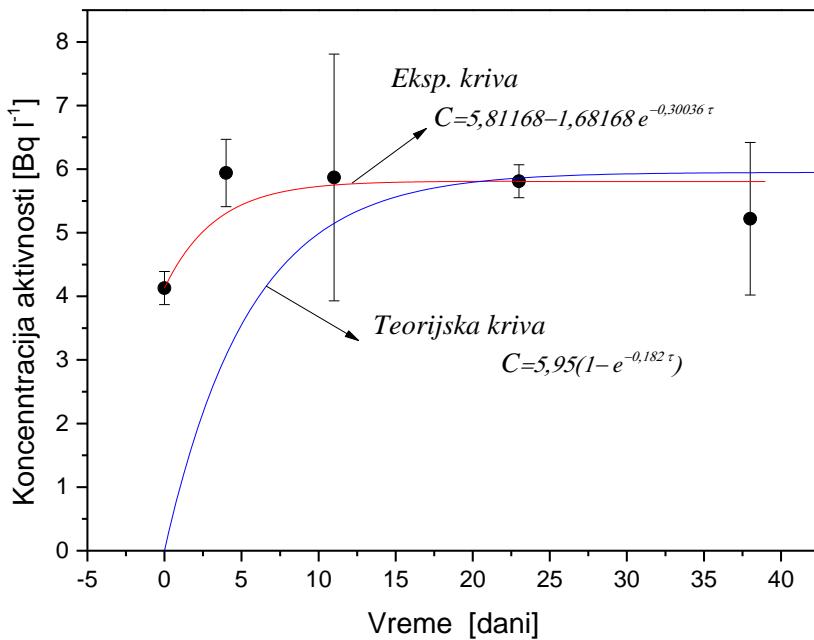
Na osnovu izvršene korekcije dobijeno je dobro slaganje između referentnih i izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra . Sva odstupanja, a naročito uzorka broj 5 su anulirana ovom eksponencijalnom zavisništu. Poslednja kolona u Tabeli 3.5 to potvrđuje, gde se odnos korigovane i referentne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra (C_{cor}/C_0) kreće između 0,99 i 1,02, što daje ekstremno bolje rezultate nego bez same korekcije. Ovom korekcijom izmenjene su i merne nesigurnosti kojima su date vrednosti i kreću se u intervalu od 10,75 % za uzorak broj 5 do 61,97 % za uzorak broj 2.

Ovakva korekcija utiče i na procenu doza zračenja koju bi primio čovek ingestojom ovakve vode. Konkretno za uzorak broj 5 doza bi bila ekstremno precenjena, dok bi za uzorke 2 i 3 dobijena manja doza zračenja, što naravno stvara probleme u realnosti.

Korekcija rezultata sekularne radioaktivne ravnoteže korelacionom funkcijom

Pošto je pronađena funkcionalna zavisnost eksperimentalnih rezultata od referentnih vrednosti koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , nameće se potreba korekcije rezultata dobijenih za sekularnu radioaktivnu ravnotežu prikazanih u Tabeli 3.3 i na slici 3.3. Korigovani rezultati su predstavljeni na slici 3.5.

Rezultati nakon korekcije daju bolje slaganje sa teorijskim predviđanjima. Na slici 3.5 jasno se vidi relativno dobro poklapanje teorijske i eksperimentalne krive nakon 23 dana od pripreme uzorka. Ovo je samo još jedna potvrda ispravnosti dobijene funkcije kojom je izvršena korekcija rezultata.



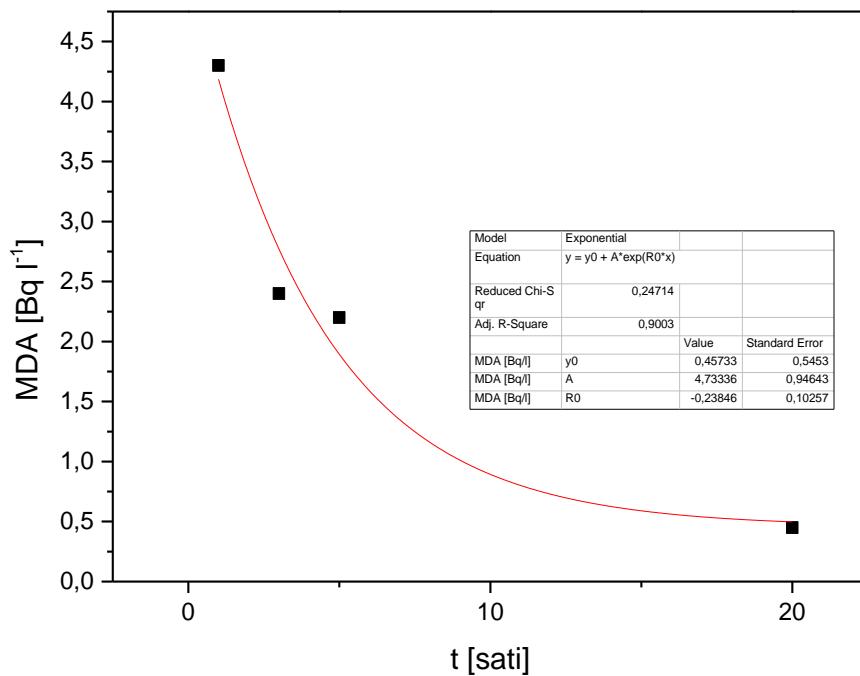
Slika 3.5 Koregovana sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{222}Rn i ^{226}Ra

3.3.1.2.2 Snimanje MDA gama spektrometra u Marineli geometriji

U okviru monitoringa, veoma je važno unapred poznavati granice detekcije merne tehnike. Što su niži novovi kontaminacije vode, teža su relavantna istraživanja i neophodna je merna tehnika sa ultraniskim granicama detekcije. U ovom delu biće posmatrano koliku to nisku koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra (MDA) može detektovati direktna metoda gama spektrometrije, u zavisnosti od vremena merenja (brojanja).

Tabela 3.6 MDA ^{226}Ra za odgovarajuće vreme merenja metodom gama spektrometrije

Minimalna koncentracija aktivnosti ^{226}Ra (MDA) [Bq·l ⁻¹]	Vreme merenja [h]
4,3	1
2,4	3
2,2	5
0,45	20



Slika 3.6 Zavisnost MDA ^{226}Ra od vremena merenja (brojanja) metodom gama spektrometrije

U Tabeli 3.6 date su izmerene vrednosti minimalne koncentracije aktivnosti za gama spektrometar u Marineli geometriji. Za *blank* korišćena je destilovana voda u kojoj praktično nema radioaktivnih materija.

Na slici 3.6 prikazana je zavisnost MDA od dužine trajanja merenja na osnovu Tabele 3.6. Uočava se opadanje granice detekcije po eksponencijalnom zakonu kako se vreme merenja povećava. Ovo naročito igra važnu ulogu kod detekcije niskih koncentracija aktivnosti, gde su potrebna prilično duga merenja, što može biti naporno za samog eksperimentatora, ovo je potvrđeno u (Köhlera, et al., 2002). Na Slici 3.6 uočava se da je za čitavih 20 sati merenja izmerena koncentracija aktivnosti od $0,45 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, što znači da za zakonsku granicu ^{226}Ra od $0,49 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ treba prilično dugo vreme merenja. Ovaj rezultat je uporediv sa rezultatom datim za istu metodu u radu (Köhlera, et al., 2002).

Ako se želi postići veoma niska granica detekcije, preporučuje se prekoncentracija uzoraka ili hemijska separacija. Što se prekoncentriše veća količina uzorka očekuje se i niža granica detekcije kao što je dato u (Guogang Jia, Jing Jia, 2012).

3.3.2 Alfa spektrometrija detektorom RAD7

Prethodnom metodom je pokazano postizanje sekularne radioaktivne ravnoteže između ^{222}Rn i ^{226}Ra kao direktnog potomka i njegovig pretka, posle nastupanja radioaktivne ravnoteže, mereći koncentraciju aktivnosti ^{222}Rn ujedno se meri i koncentracija aktivnosti ^{226}Ra . Samo na ovakav način se koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u vodi može meriti detektorom RAD7. Uzorci su mereni direktnom metodom.

3.3.2.1 Opšte karakteristike detektora

RAD7 detektor proizvođača *Durridge Company* je poluprovodnički, silicijumski “solid-state” alfa spektrometar koji služi za merenje radona i torona u vodi, odnosno isključivo ova dva gasovita radionuklida. Na slici 3.7 prikazan je izgled korišćenog RAD7 detektora.

Svako jezgro radona 222 raspada se kroz niz polonijum 218, oovo 214, bizmut 214, polonijum 214, i oovo 210. Sa svakom transformacijom na tom putu jezgro emituje karakteristično zračenja: alfa čestice, beta čestice ili gama zrake, ili kombinacije ovih. RAD7 je dizajniran da detektuje samo alfa čestice.

RAD7 meri koncentraciju radonskog gasa. On upumpava vazduh kroz fini ulazni filter (slika 3.8), koji isključuje potomke, tako da potomci ne mogu da uđu u komoru za analizu. Radon koji uđe u RAD7 detektor raspada se u samoj komori, i tu se mogu detektovati alfa čestice koje potiču od potomaka, polonijuma. RAD7 detektuje potomke koji su od značaja i koji su direktno iz raspada radona u samom detektoru.

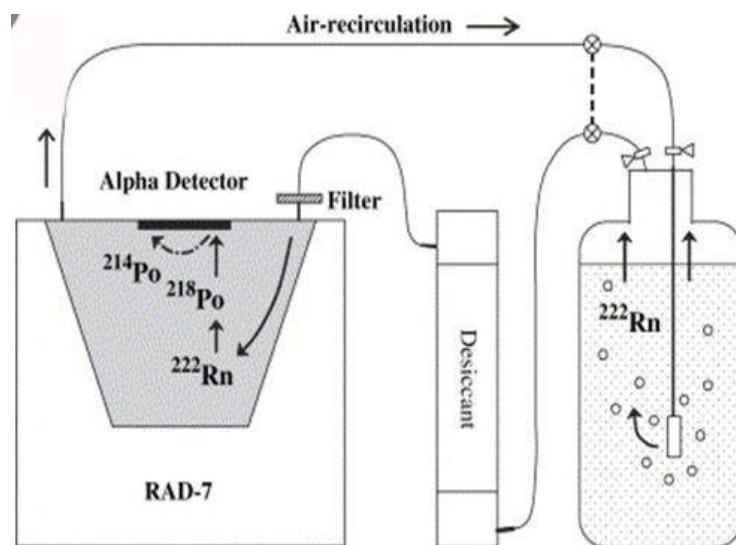
Ovaj detektor sadrži polusferu zapremine 0,7 l koja je obložena iznutra sa električnim provodnicima. *Solid-state* silicijumski alfa detektor je u centralnoj hemisferi. Unutar zapremine ćelije se stvara veliki napon

od 2000 do 2500V, između provodnika i silicijumskog detektora. Električno polje ubrzava pozitivno nanelektrisane čestice detektora, da se kreću ka površini detektora (Manual, RAD7, 2017).



Slika 3.7 Korišćeni alfa spektrometar RAD7

Najviše široko podržane zapremine uzorka su 40 ml i 250 ml, jer su na odgovarajući način ugrađene u detektorski protokol kao: Wat-40 i Wat-250 protokol. Ova dva protokola su korišćena u kalibraciji detektora i zato su najpogodnija. Boce zapremine 250 ml se koriste za one uzorke u kojima se ne očekuje koncentracija aktivnosti veća od $100 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ (efikasnost ekstrakcije je 94%), u suprotnom treba uzorkovati u zapremini boce od 40 ml (efikasnost ekstrakcije je 99%).



Slika 3.8 Princip rada detektora RAD7

Pre početka samog merenja konkretnog uzorka potrebno je čitav sistem pustiti da produva običan vazduh, kako bi se iz detektora izbacio stari radon od prethodnog merenja i spustila vlažnost vazduha ispod 10%, vlažnost vazduha može uticati na mernu nesigurnost dobijenih rezultata.

Kada je reč o merenju koncentracije radona u vodi, koristi se sistem upumpavanja vazduha u uzorak vode kako bi radon bio istisnut i preveden u komoru za merenje kao na slici 3.8. U takvom zatvorenom kružnom sistemu su zapremina vazduha i vode konstantni i nezavisni od brzine protoka. Vazduh cirkuliše u ciklusima kroz vodu i kontinualno ekstrahuje radon iz vode. Efikasnost ekstrakcije radona iz vode u vazduh koji cirkuliše do merne komore zavisi od temperature ali je uvek veći od 90. Ovaj sistem postiže ravnotežu za 5 minuta, posle više nema radona koji bi se mogao izdvojiti iz vode.

Na pozadinske efekte u detektoru RAD H₂O najviše utiču odbroji radonovih potomaka i tragovi radona zadržani od prethodnih merenja, naročito ukoliko je prethodno bio meren uzorak sa visokom aktivnošću radona. *Background (blank)* uzorak je destilovana voda ostavljena da stoji zatvorena više od 4 nedelje i koji je potom meren nekoliko puta u istom protokolu (održavajući relativnu vlažnost < 8%). Background iznosi 0,1 min⁻¹, minimalna detektibilna aktivnost (MDA) za 20 minuta merenja je 0,37 Bq·l⁻¹, koju je moguće postići jedino ukoliko se sav zaostali radon eliminiše iz sistema (odnosi se na merenje 250 ml uzorka vode) (Manual, RAD7, 2017).

Merenja uzorka se vrše u ciklusima. Rezultati mogu biti direktno štampani kao na slici 3.7 ili detektor može biti povezan na računar kao što je dato u (Manual, RAD7, 2017). Posle svakog ciklusa merenja podešeno je automatsko štampanje rezultata. Rezultati bivaju prikazani sa maksimalnim i minimalnim vrednostima kao i mernim nesigurnostima za izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima.

3.3.2.2 Rezultati i diskusija

3.3.2.2.1 Snimanje MDA alfa spektrometra RAD7

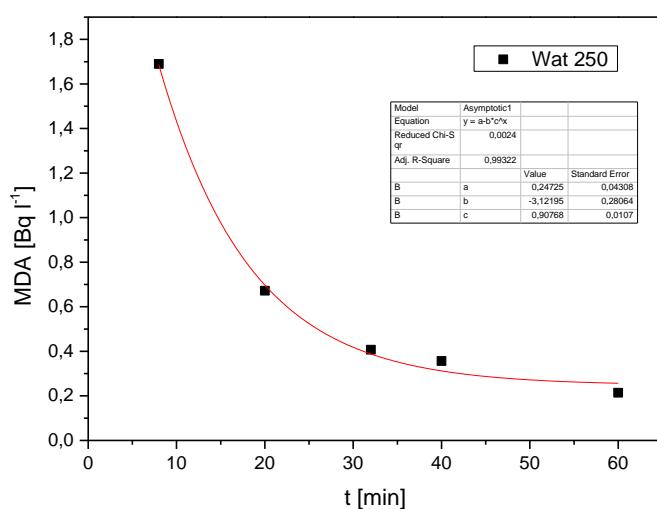
Kako je rečeno u poglavljju 2.2.3 minimalna detektibilna aktivnost zavisi od zapreme uzorka. Dakle, očekuje se različita granica detekcije za definisane protokole Wat-40 i Wat-250 alfa spektrometra RAD7.

Za merenje MDA korišćena je obična destilovana voda. MDA u ovom slučaju predstavlja granicu nepoverenja kojom će biti prikazan rezultat, pošto u destilovanoj vodi nema prisutnog radona ili njegovih potomaka. Druga veoma važna stvar jeste da MDA zavisi od dužine trajanja merenja, kao što je bilo reči i kod prethodne metode. Merenja su vršena za vremena od 2, 5, 8, 10 i 15 minuta, od po četiri ciklusa za svako merenje, potom su dobijene vrednosti usrednjene.

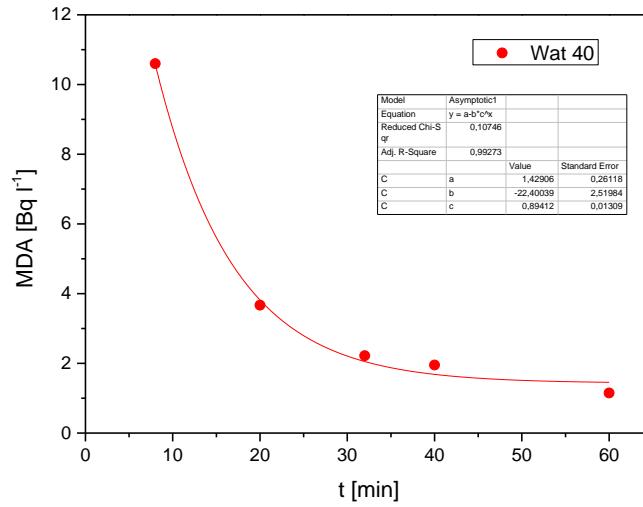
Na slikama 3.9 i 3.10 prikazane su izmerene minimalne detektibilne aktivnosti ^{226}Ra za oba protokola. Fitovanje je izvršeno u softverskom programu Origin Pro 9.0.

Uočava se da što je vreme merenja duže to se MDA smanjuje sa vremenom po eksponencijalnom zakonu. Slaganja sa eksponencijalnom funkcijom su poprilično dobra što se može videti i iz prikazanih parametara fitovanih vrednosti.

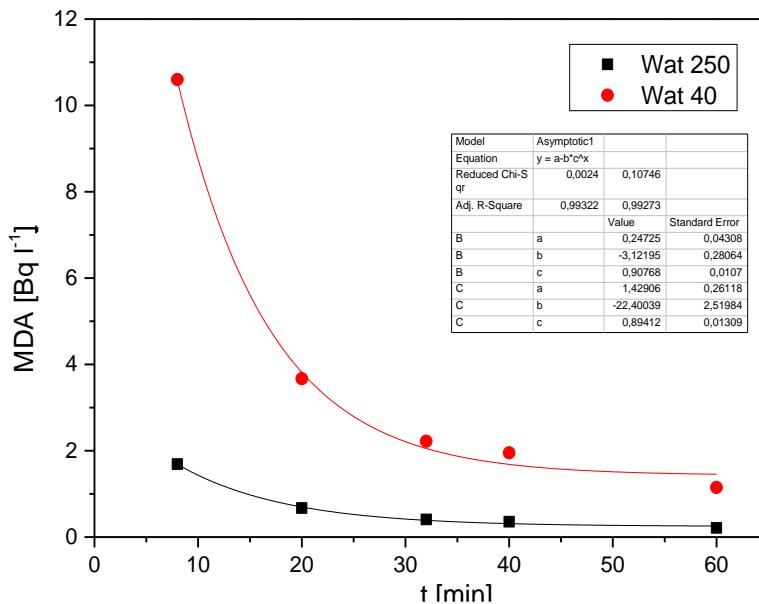
Na slici 3.11 prikazano je poređenje ova dva protokola, odnosno ove dve zapremine uzoraka destilovane vode. Jasno se vidi da je MDA dosta viša kod uzorka sa manjom zapreminom i do nekoliko puta. Dobijena MDA za protokol Wat-250 iznosi $0,214 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, a za protokol Wat-40 je $1,15 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, pri 1 h merenja.



Slika 3.9 Zavisnost MDA od vremena merenja, protokol Wat-250



Slika 3.10 Zavisnost MDA od vremena merenja, protokol Wat-40



Slika 3.11 Komparacija MDA u protokole Wat-40 i Wat-250

3.3.2.2.2 Merenje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima

Rezultati izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra ovom mernom tehnikom prikazani su u Tabeli 3.7. Merenja su vršena od po četiri ciklusa, svaki približno po 5 minuta. Ukupno vreme merenja dato je u Tabeli 3.7 i iznosilo je 1038 sekundi. Merne nesigurnosti kojima su predstavljeni rezultati se kreću od 13,72% do čak 105%. Jasno se vidi pravilnost smanjenja merne nesigurnosti sa povećanjem koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u uzorku. Što je manja koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , teže se detektuje, odnosno merna nesigurnost je veća, to se jasno vidi kod uzorka broj 1, najniže koncentracije aktivnosti.

Tabela 3.7 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti uzoraka ^{226}Ra metodom alfa spektrometrije detektorom RAD7

Red. broj uzorka	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [$\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$]	Metoda alfa- spektrometrije RAD7, C_{exp} [$\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$]	Vreme merenja [s]	Merna nesigurnost [%]	C_{exp}/C_0
1.	$0,397 \pm 0,002$	$0,20 \pm 0,21$	1038	105	0,50
2.	$1,587 \pm 0,008$	$0,76 \pm 0,58$		75,79	0,48
3.	$3,97 \pm 0,02$	$1,47 \pm 0,36$		24,22	0,37
4.	$5,95 \pm 0,03$	$2,46 \pm 0,49$		19,92	0,41
5.	$9,92 \pm 0,05$	$3,55 \pm 0,49$		13,72	0,36

Odnos eksperimentalnih i referentnih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra (C_{exp}/C_0) je veoma mali za ovu mernu tehniku i kreće se u intervalu od **0,50** do **0,36**, što je veoma nisko i daleko od jedinice. Apriori se može primetiti da detektor podbacuje, odnosno ne daje očekivane referentne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , što je ustanovljeno pri ranijim merenjima na ovom detektoru (Stojković I., et al., 2015). Ovo neslaganje se javlja kod svih 5 uzoraka, a najproblematičnije je kod uzorka broj 5, gde je praktično izmerena trećina referentne vrednosti koncentracije aktivnosti ^{226}Ra . Zbog drastičnih neslaganja izmerenih i referentnih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra neophodno je izvršiti korekciju dobijenih rezultata.

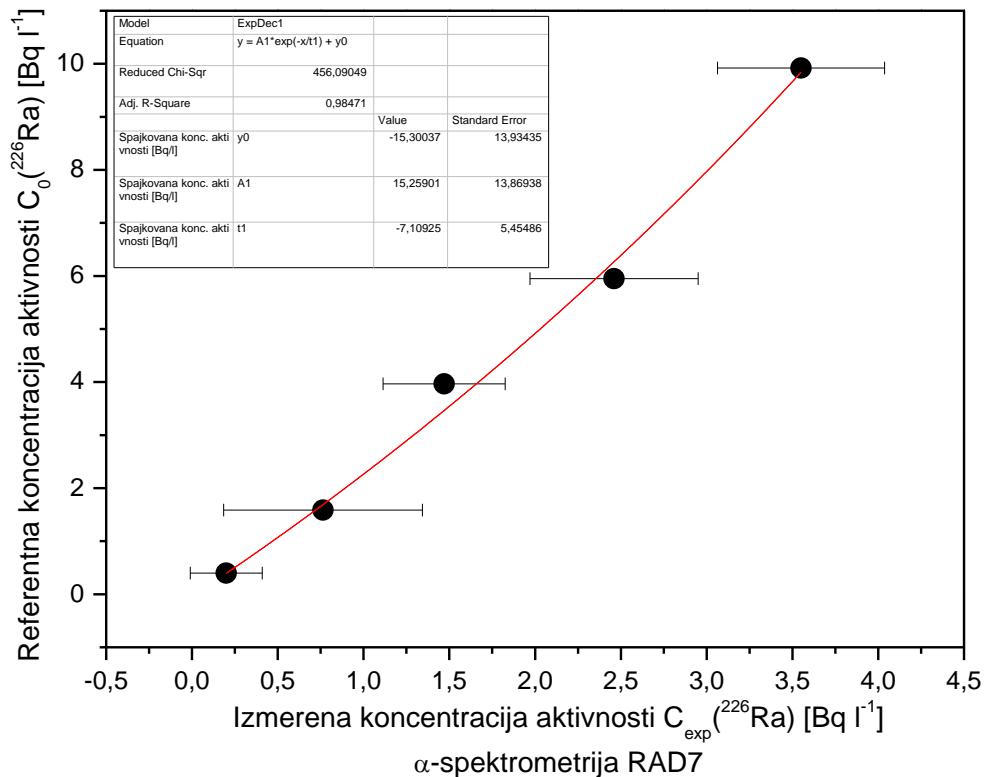
3.3.2.2.3 Korekcija eksperimentalnih rezultata

Kao i kod prethodne merne tehnike biće izvršena korekcija rezultata fitovanjem eksperimentalnih rezultata, između referentne koncentracije aktivnosti i koncentracije aktivnosti ^{226}Ra dobijene ovom mernom tehnikom, detektorom RAD7. Rezultati su fitovani korišćenjem softverskog programa Origin Pro 9.0

odabirom takve zavisnosti koja se što bolje poklapa sa rezultatima uz minimalno odstupanje (slika 3.12). Pokazalo se da je najoptimalnija kriva ona prikazana na Slici 3.12 i ima sledeći oblik:

$$y = 15,25901 \cdot e^{\frac{x}{7,10925}} - 15,30037,$$

gde y predstavlja referentnu koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra u $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, a x je eksperimentalna vrednost koncentracije aktivnosti ^{226}Ra koja je izmerena, takođe u $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.



Slika 3.12 Korelacija između referentnih i izmerenih vrednosti ^{226}Ra alfa spektrometrijom RAD7

Vidi se da je korelacija eksponencijalnog tipa, sa konveksnim karakterom. Ako se u ovakvu korelacionu krivu uvrste dobijene eksperimentalne vrednosti dobijaju se vrednosti date u Tabeli 3.8.

Posle izvršene korekcije dobija se dobro slaganje između eksperimentalnih i referentnih koncentracija aktivnosti uzorka ^{226}Ra . Korekcija je imala značajne reperkusije na odnos korigovane i referentne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra (C_{cor}/C_0) i one se kreću u intervalu od 0,87 za uzorak broj 3 do potpunoog slaganja za uzorak broj 1. Ovim je značajno poboljšana korišćena merna tehnika, što se vidi iz priloženog i iz poređenja sa Tabelom 3.7. Merna nesigurnost je očuvala trend opadanja sa porastom koncentracije aktivnosti ^{226}Ra . Uzorak broj 1 i dalje ima najvišu mernu nesigurnost, ali najbolje slaganje sa referentnom vrednošću.

Tabela 3.8 Korigovani rezultati uzoraka ^{226}Ra merne tehnike detektoru RAD7 prema korelacionoj funkciji

Red. broj uzorka	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [Bq·l ⁻¹]	Metoda alfa- spektrometrije RAD7, C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana merna nesigurnost [%]	C_{cor}/C_0
1.	$0,397 \pm 0,002$	$0,20 \pm 0,21$	$0,397 \pm 0,416$	104,79	1
2.	$1,587 \pm 0,008$	$0,76 \pm 0,58$	$1,57 \pm 1,17$	74,33	0,99
3.	$3,97 \pm 0,02$	$1,47 \pm 0,36$	$3,46 \pm 1,15$	33,12	0,87
4.	$5,95 \pm 0,03$	$2,46 \pm 0,49$	$6,04 \pm 0,99$	16,27	1,02
5.	$9,92 \pm 0,05$	$3,55 \pm 0,49$	$9,83 \pm 0,98$	9,96	0,99

3.3.3 Alfa/beta spektrometrija detektorom Quantulus 1220TM

3.3.3.1 Niskofonski tečni scintilacioni detektor, Quantulus 1220TM

Quantulus 1220TM, proizvođača *Perkin Elmera*, Finska, je tečni scintilacioni brojač koji ima dokazano nenađmašan učinak merenja ekstremno niskih koncentracija aktivnosti kosmogenih i prirodnih radionuklida. Ovaj tečni spektrometar ima veoma veliku sposobnost detekcije niskih koncentracija aktivnosti radionuklida. Izgled spektrometra prikazan je na slici 3.13.

Spektrometar služi za detekciju i brojanje, alfa i beta zračenja, Čerenkovljevog ekekta (*Cerenkov radiation*), X-zračenja, Augerovih elektrona (*Auger electrons*), luminescencije, i gama zračenja. Maksimalna fizička zapremina uzorka koji treba biti pripremljen jeste 20 ml.

Ovaj uređaj karakteriše vema visoka stabilnost, ako merenje traje veoma dugo, poseduje veoma dobru i aktivnu i pasivnu zaštitu, zbog toga ima veoma nizak *background*. Fotomultiplikatori pokazuju veoma niske inherentne pozadinske efekte i spektralnu stabilnost uz visiku kvantnu efikasnost. Asimetričan pasivni štit koji poseduje spektrometar slabi (atenuira) većinu gama zračenja iz okoline, maksimalna debljina olova je 200 mm na vrhu, 100 mm na bočnim zidovima i 150 mm ispod komore za brojanje.

U Quantulus-u 1220TM se koriste dve fotomultiplikatorske cevi za detekciju *background-a* i dve, odvojeno, za koincidentno brojanja uzorka. Komora za uzorak je potpuno okružena detektorima, a uzorak i okolni detektori su optički izolovani jedni od drugih da bi se obezbedila redukcija *background-a*, koji je nezavisan od uzorka.

Automatski i kontinuirano, spektar se stabilizuje fotomultiplikatorskom cevi koja pojačava impuls 62 puta/sekundi koristeći zelene GaP LED kao izvor referentne svetlosti, a visok napon se automatski podešava i održava se izlazni signal konstantim.

Dva dualna multikanalna analizatora (MCA) osiguravaju skladištenje pune spektralne informacije, čak mogu skladištiti i informacije koje su odbačene ako je to potrebno. Četiri spektra za svaki uzorak se može čuvati u oba instrumenta. Original spektar pored MCA može biti sačuvan i na hard-disku u ASCII formatu, a dostupni su i u sopstvenim programima korisnika. MCA je zasnovan na 12-bitnom analogno-digitalnom konvertoru i nudi rezoluciju 0,0038 keV u najnižem opsegu (što odgovara tricijumu) (QUANTULUS™, 2002).

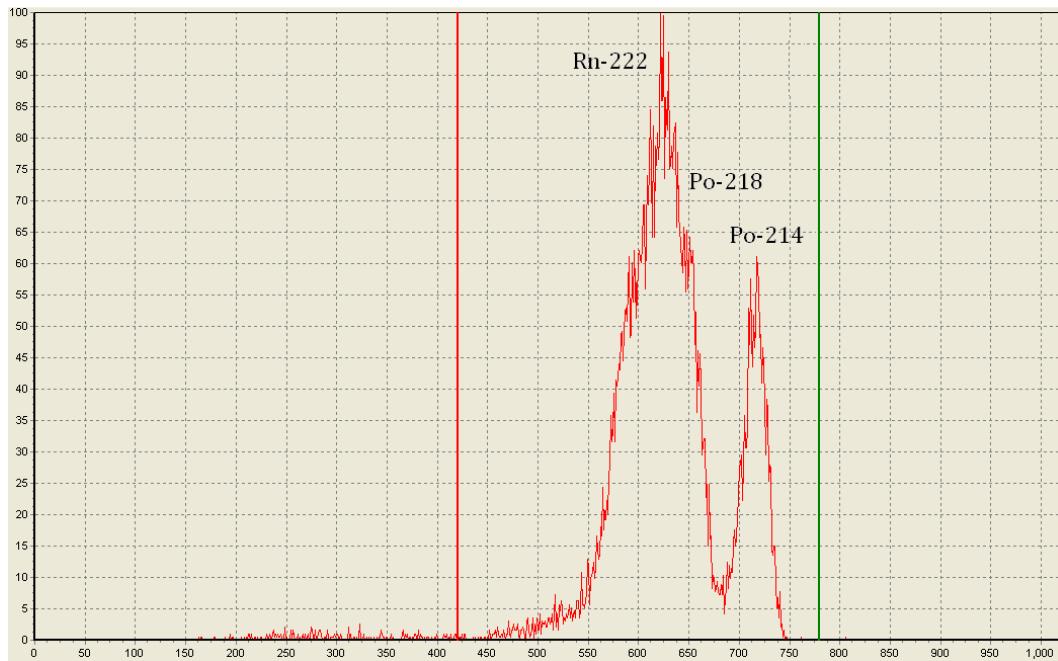


Slika 3.13 Tečni scintilacioni spektrometar Quantulus 1220™

Veoma bitan parameter koji je važno definisati kod ovog spektrometra je tzv. *Pulse Shape Analyzer* – PSA. Standardna funkcija spektrometra omogućuje istovremeno akumuliranje čistih alfa i beta spektara zračenja koji su sadržani u uzorku. PSA je neophodan preduslov za osetljivost tečnog scintilacionog alfa brojanja. Alfa *background* znatno smanjuje PSA u odnosu na ukupan *background* uzorka koji se uglavnom sastoji od beta impulsa. Jasno razdvajanje alfa i beta spektara u odbrojima postignuto je koktelima bez aditiva. PSA se takođe može koristiti za umanjenje *background-a* beta spektra. PSA omogućava odvajanje alfa/beta u ultra režimu niskog nivoa. Spektrometar otkriva alfa emitere zračenja 100.000 puta brže od beta emitera zračenja (QUANTULUS™, 2002).

Uređaj omogućava rutinsko korišćenje običnih plastičnih i staklenih bočica (*viala*) u koje se smeštaju uzorci, zavisno od korišćene metode merenja. Kada se upotrebljavaju isparljivi rastvarači preporučuje se da se koriste teflonski čepovi da bi se sprecili gubici i spečio uticaj tih isparenja materija na uređaj. Uzorci se

mešaju sa scintilacionim koktelima, što je sastavni deo tečne scintilacione spektrometrije. Za svaku metodu je propisan odnos uzorak-koktel. Svi komercijalni scintilacioni kokteli su prihvatljivi kod ovog spektrometra, samo je važno pratiti preporuke o vrstama bočica za svaku metodu (QUANTULUS™, 2002).



Slika 3.14 Izgled spektra kalibracionog uzorka ^{226}Ra u ravnoteži sa ^{222}Rn (EasyView) (Stojković, Todorović, Nikolov, & Tenjović, 2016)

Quantulus 1220™ softver radi na platformi Windows 95, NT4 ili Windows XP. Korisnički interfejs je program WinQ (1220-307 WinQ). Ovaj program nudi veliki broj grupa parametara ili protokola, ograničena je samo veličina hard-diska na računaru. Takođe obezbeđuje direktni prikaz izabranog spektra na ekranu računara. Jedan takav spektar dobijen ovim spektrometrom prikazan je na slici 3.14. Sistem je tako programiran da se programu WinQ može zadati više uslova koji se obrađuju istovremeno. Sirove informacije sačuvane na hard disku računara mogu se kasnije obrađivati oflajn pomoću programa Easy View-softvera za analizu spektara. 1224-534 Easy View prikazuje do 6 spektara istovremeno i omogućava spektralnu aritmetiku, različite vrste kalkulacija i statističkih analiza (QUANTULUS™, 2002).

Prednosti ovakvog načina ispitivanja uzorka tečnom scintilacionom spektrometrijom (LSC) su:

- 1) Nepotrebna hemijska separacija,
- 2) MDA veoma nizak, *background* redukovani,
- 3) Automatizacija merenja koja omogućuje merenje više uzorka zaredom na osnovu zadatog protokola merenja od strane eksperimentatora, pri čemu eksperimentator određuje redosled merenja uzorka, broj ponavljanja (repeticija) kao i vreme merenja svakog uzorka.

3.3.3.1.1 EPA 913.0 metoda

EPA 913.0 je metoda propisana od strane američke Agencije za zaštitu životne sredine (Environmental Protection Agency - EPA) za određivanje koncentracije aktivnosti ^{222}Rn na tečnom scintilacionom spektrometru (LSC).

Procedura ove metode je dizajnirana za analizu radona iz podzemnih i površinskih izvora vode. Primene ovog analitičkog postupka osim vode za piće nisu ispitane, zbog toga se preporučuje njen korišćene samo za uzorke pijaće vode. Metoda propisuje i način uzorkovanja vode, a to podrazumeva da se prilikom uzorkovanja vode ona pusti da prelije albalazu u koju se sipa i brzo zatvori da radon ne bi pobegao. Merenje ovako uzorkovane vode je potrebno izvršiti u naredna tri dana, zbog perioda poluraspada radona. Uzorkovana voda u laboratorijskim uslovima mora stajati na konstantnoj temperaturi i pritisku, jer ovi parametri utiču na difuziju radona. Urorkovanje je potrebno vršiti u staklenim flašama sa teflonskim čepom, a prilikom pripreme uzorka to treba vršiti u malim staklenim bočicama, *vialima*, jer je potvrđeno da staklene boce i teflonski čepovi sprečavaju difuziju radona pa se zbog toga preporučuju za njegovo uzorkovanje i pripremu (913.0, EPA Method, 1991), (Kim, et al., 2016).

U ovom postupku se odmeri 10 ml uzorka vode (u koju je dodat standard ^{226}Ra) i prenese u stakleni vial od 20 ml u koji se potom doda 10 ml scintilacionog koktela. Radon difunduje iz uzorka u mineralno ulje (scintilacioni koktel) za koji ima mnogo veći afinitet nego za vodu. Uzorak se nakon toga uravnoteži za tri sata, a zatim snima spektar narednih 50 minuta na tečnom scintilacionom detektoru (brojaču), brojanje se ponavlja u 5 ciklusa (913.0, EPA Method, 1991). U ranijim istraživanjima je utvrđeno da izbor odnosno vrsta korišćenog scintilacionog koktela utiče na difuziju radona kroz vial (Kim, et al., 2016).

Metoda rezultate prikazuje u jedinicama $\text{pCi}\cdot\text{l}^{-1}$, što je potrebno preračunati¹⁰. U metodi je naglašen i dodatak koncentrovane azotne (HNO_3) kiseline u odnosu na 0,5 ml na 20 ml vode. Odmeravanje vode, kiseline i scintilatora mora se izvoditi što preciznije odgovarajućim pipetama, da se ne bi unela prevelika greška pipetiranja (913.0, EPA Method, 1991).

Zajedno sa pripremom uzorka priprema se i *blank* uzorak, koji služi za određivanje *backgrounda* koji mora biti oduzet, u tu svrhu napravljen je jedan poseban vial gde je kao *blank* korišćena destilovana voda. Odnos destilovana voda-scintilacioni koktel je 10 ml : 10 ml (1:1).

Pošto se ovom metodom direktno meri ^{226}Ra , podrazumeva se da uzorci treba da stoje 30 dana da bi nastupila sekularna radioaktivna ravnoteža.

Optimalni prozor je korišćen kao u radovima (Todorović, Stojković, Nikolov, & Pispak; 2015) koji je formiran brojanjem radijumskog kalibracionog standarda 5 minuta. Korišćeni optimalni prozor nakon snimljenih spektara u WinQ pri analizi u Easy View softverskom programu bio je 420-780 kanala.

¹⁰ Ci (kiri) je stara jedinica za aktivnost uzorka i iznosi $3,7 \cdot 10^{10} \text{Bq}$, objašnjena u poglavljju 1.2.

Za ovu metodu korišćen je već podešen PSA parameter dobijen u preseku krivih ^{241}Am i ^{90}Sr kao čistih alfa i beta emitera, respektivno, koji je iznosio 68 (slika 3.18) (Stojković I., et al., 2015).

Korekcija rezultata brojanja prema ovoj metodi definisana je tzv. *CF* kalibracionim faktorom koji je dat kao:

$$CF = \frac{S - B}{C \cdot V \cdot D} \quad 3.1$$

gde je:

S i B [min^{-1}] - brzina brojanja uzorka (vode sa standardom) i *backgrounda* (detilovane vode),

C [$\text{pCi} \cdot \text{l}^{-1}$] – koncentracija aktivnosti standarda,

V [l] – zapremina uzorka dodatog u vial i

D – korekcioni faktor raspada ($e^{-\lambda t}$), računat od vremena urorkovanja vode do dana merenja, t -vreme koje je proteklo od uzorkovanja do merenja uzorka, λ – konstanta radioaktivnog raspada ^{222}Rn .

Određivanje koncentracije aktivnosti ^{222}Rn se računa prema sledećem izrazu:

$$A (^{222}\text{Rn}) [\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}] = \frac{G - B}{CF \cdot D \cdot V} \cdot 3,7 \cdot 10^{10} \quad 3.2$$

gde je:

G [min^{-1}] – ukupan odboj uzorka po minuti,

CF – kalibracionu factor dat relacijom 3.1.

Računanje merne nesigurnosti sa poverenjem od 95% za svaki uzorak dato je relacijom :

$$2\sigma[Bq \cdot l^{-1}] = \frac{2 \left\{ \frac{G}{T_G} + \frac{B}{T_B} \right\}^{1/2}}{CF \cdot D \cdot V} \cdot 3,7 \cdot 10^{10} \quad 3.3$$

gde je:

T_G [min] – vreme merenja uzorka,

T_B [min] – vreme merenja *background-a*, koje je iznosilo 600 minuta.

Minimalna detektabilna aktivnost (*MDA*) [$\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$] određuje se na osnovu Kirijeve formule (Currie, L.A., 1968) modifikovane u publikacijama (Rogers, V.C., 1970) i (Strom, D.J., Stansbury, P.S., 1992) kao :

$$MDA = \frac{2,71 + 4,65\sqrt{B \cdot T_B}}{CF \cdot D \cdot V \cdot T_B} \quad 3.4$$

Ili na osnovu merne nesigurnosti *blank-a* kao:

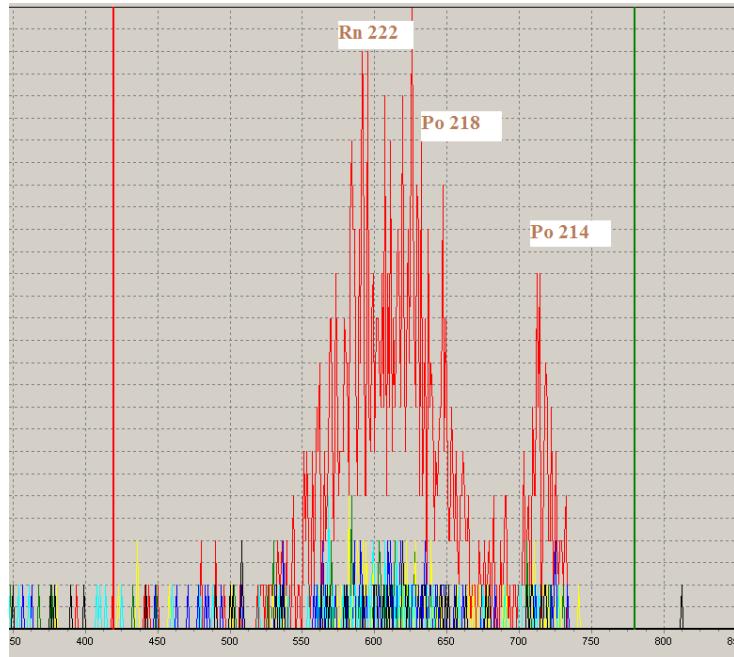
$$MDA_U = \frac{4,65 \sqrt{u(B)}}{CF \cdot V} \quad 3.5$$

gde $u(B)$ – predstavlja mernu nesigurnost kojom je dat odbroj *blank-a*.

Ukoliko je koncentracija aktivnosti $^{226}\text{Ra} < \text{MDA}$ preporučuje se prekoncentracija uparavanjem ili povećanje dužine merenja (Stojković, Ivana, 2015).

3.3.3.1.1 Rezultati i diskusija

Uzorci su pripremljeni sa *Ultima Gold F* scintilacionim koktelom. Spektar dobijen za uzorak broj 1 (Tabela 3.1) snimljen spektrometrom Quantulus-u 1220TM sa ovim scintilacionim koktelom prikazan je na slici 3.15.



Slika 3.15 Spektar uzorka br. 1 pripremljenog sa *Ultima Gold F* scintilacionim koktelom (EasyView)

Jasno se uočavaju pikovi ^{222}Rn i njegovih potomaka ^{218}Po i ^{214}Po u optimalnom prozoru od 420-780 kanala. Loša rezolucija pokova se pripisuje relativno kratkom vremenu merenja od 50 minuta. Očigledno da je za bolju rezoluciju potrebno i duže vreme merenja, a pogotovo ako se radi o veoma niskoj koncentraciji aktivnosti uzorka, kakav je slučaj kod uzorka broj 1. Ukupno vreme merenje svakog uzorka iznosilo je 300 minuta. Dobijeni eksperimentalni rezultati koncentracija aktivnosti ^{226}Ra dati su u Tabeli 3.9

Tabela 3.9 Izmerene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima sa *Ultima Gold F* scintilatorom

Red. broj uzorka	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [Bq·l ⁻¹]	LSC -EPA 913.0 metoda C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Vreme merenja [s]	Merna nesigurnost [%]	C_{exp}/C_0
1.	$0,397 \pm 0,002$	$0,35 \pm 0,07$	18000	20	0,88
2.	$1,587 \pm 0,008$	$1,57 \pm 0,22$		14	0,99
3.	$3,97 \pm 0,02$	$3,39 \pm 0,27$		7,96	0,85
4.	$7,93 \pm 0,03$	$7,40 \pm 0,30$		4,05	0,93
5.	$9,92 \pm 0,05$	$8,60 \pm 0,50$		5,81	0,87

Uzorci ^{226}Ra mereni ovom metodom daju prilično dobre vrednosti koncentracija aktivnosti u odnosu na same referentne vrednosti koncentracija aktivnosti. Rezultati su predstavljeni sa mernim nesigurnostima u raskoraku od 5,81 % za uzorak broj 5 do 20% za uzorak broj 1. Dobro slaganje pokazuje i sam odnos C_{exp}/C_0 koji se kreće u intervalu od 0,85 kod uzorka broj 3 do 0,99 za uzorak broj 2. Kao i kod prethodnih metoda tražena je korelacija između referentnih i eksperimentalnih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra za što bolje slaganje rezultata, odnosno njihova korekcija.

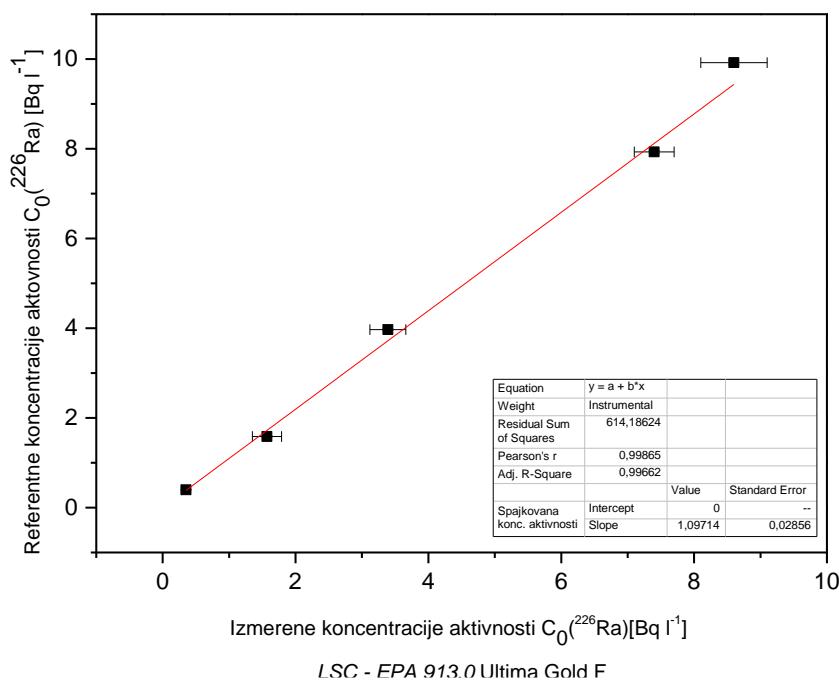
3.3.3.1.1.1.1 Korekcija eksperimentalnih rezultata

Pošto se iz Tabele 3.9 uočavaju manja neslaganja, pokušan je nalazak optimalne korelacije između izmerenih i referentnih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , a potom korekcija eksperimentalnih rezultata kao za prethodne dve metode.

Tabela 3.10 Korigovane koncentracije aktivnosti ^{226}Ra prema korelacionoj funkciji za metodu LSC EPA 913.0

Red. broj uzorka	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [Bq·l ⁻¹]	LSC – EPA 913.0 C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana merna nesigurnost [%]	C_{cor}/C_0
1.	$0,397 \pm 0,002$	$0,35 \pm 0,07$	$0,38 \pm 0,08$	21,1	0,97
2.	$1,587 \pm 0,008$	$1,57 \pm 0,22$	$1,72 \pm 0,24$	13,95	1,09
3.	$3,97 \pm 0,02$	$3,39 \pm 0,27$	$3,72 \pm 0,30$	8,1	0,94
4.	$7,93 \pm 0,03$	$7,40 \pm 0,30$	$8,12 \pm 0,33$	4,1	1,02
5.	$9,92 \pm 0,05$	$8,60 \pm 0,50$	$9,44 \pm 0,55$	5,83	0,95

Nadena korelaciona funkcija između referentnih i izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra predstavljena je na slici 3.16. Fitovanje je izvršeno softverskim programom Origin Pro 9.0. Korelaciona funkcija je linearog tipa i ma oblik: $y = 1,09714 \cdot x$, gde y predstavlja referentnu koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra [Bq·l⁻¹], a x izmerenu koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra metodom LSC EPA 913.0 [Bq·l⁻¹]. Korigovane koncentracije aktivnosti ^{226}Ra date su u Tabeli 3.10. Primećuje se veoma dobra saglasnost eksperimentalnih i referentnih vrednosti koncentracija aktivnosti i bez same korekcije, a to potvrđuje i veoma mali korekcioni faktor koji iznosi 1,09714 ($\approx 1,1$). Ova metoda je prihvatljivija jer je gotovo nije potrebno ni korigovati. Korelaciona funkcija daje dobre odnose C_{cor}/C_0 koji se kreću od 0,94 za uzorak broj 3 do 1,09 za uzorak broj 2. Krigovane merne nesigurnosti kojima su iskazane vrednosti se kreću od 4,1% za uzorak broj 4 do 21,1 za uzorak broj 1.



Slika 3.16 Korelacija između referentnih i izmerenih vrednosti ^{226}Ra metodom LSC EPA 913.0

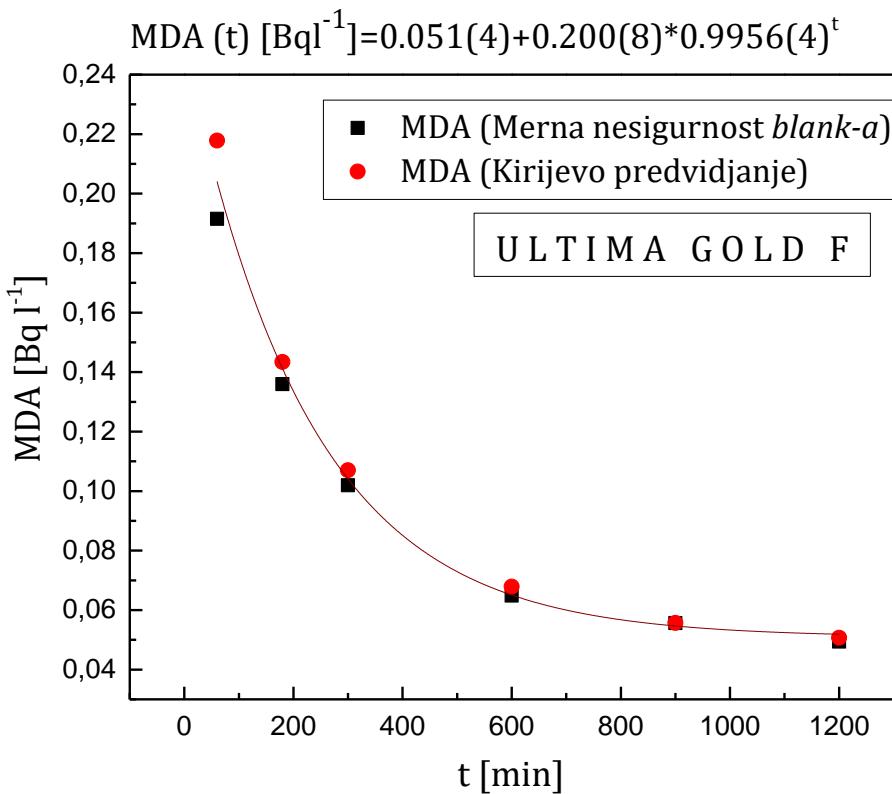
3.3.3.1.1.2 Snimanje minimalne detektabilne aktivnosti (MDA) za metodu LSC-EPA 913.0

Vreme merenja koje je zadato Quantulus-u (PSA=68) iznosilo je 60, 180, 300, 600 i 1200 minuta. Na osnovu dobijenih odbroja izračunata je postignuta granica detekcije za svako zadato vreme, te je dobijena funkcionalna zavisnost MDA od vremena merenja prikazana na slici 3.17. MDA je računata prema relacijama 3.4 i 3.5. Rezultati za ovu metodu dati su grafički i predstavljeni su na slici 3.17 i uporedivi su sa rezultatom u radu (Todorović et al. 2014).

Jasno se uočava eksponencijalni trend opadanja MDA sa vremenom merenja (brojanja) prema dobijenoj funkciji na slici 3.17. Dobijena MDA za 300 i 1200 minuta brojanja prikazana je u Tabeli 3.11, gde se vidi prilično dobro slaganje Kirijeve krive sa krivom merne nesigurnosti *blank-a*.

Tabela 3.11 MDA ^{226}Ra za vremena 300 i 1200 minuta brojanja *blank-a* za metodu LSC EPA 913.0

LSC EPA 913.0	MDA [Bq l^{-1}] 300 min brojanja NESIGURNOST BLANK-A	MDA [Bq l^{-1}] 1200 min brojanja, NESIGURNOST BLANK-A	MDA [Bq l^{-1}] 300 min brojanja, KIRIJEVA KRIVA	MDA [Bq l^{-1}] 1200 min brojanja, KIRIJEVA KRIVA
Ultima Gold F	0,104	0,049	0,106	0,053

Slika 3.17 Minimalna detektibilna aktivnost (MDA) ^{226}Ra za metodu LSC EPA 913.0

3.3.3.1.2 ASTM D 7283-06 standardna metoda za određivanje ukupne alfa/beta aktivnosti

Prirodne vode sadrže veliki broj alfa (Th, Ra, Po i izotopi U) i beta emitera (koji potiču iz prirodnog niza urana, torijuma i aktinijuma, kao i ^{40}K i veštačke izotope, ^{90}Sr i ^{137}Cs). Ingestija pijaće vode koja sadrži visoke koncentracije ovih radionuklida može da izazove ozbiljne zdravstvene probleme stanovništva. Merenja ukupne alfa/beta aktivnosti sprovode se kao *screening* metode radi otkrivanja prisustva dugoživećih emitera (^{238}U , ^{234}U , ^{226}Ra , ^{210}Po) i ostalih radionuklida (^{40}K , ^{210}Pb , ^{228}Ra) u vodi, tj. radi opše procene da li ispitivani uzorak zahteva dalju analizu specifičnijim nuklearnim metodama (Salonen, 2006). Zakonom („Sl. glasničnik RS“ br. 36/2009 i 93/2012, 2009, 2012) i pravilnikom ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013, 2011, 2013) definisane su vrednosti koncentracija aktivnosti u pijaćoj vodi gde je granica dozvoljene alfa aktivnosti u vodi $0,5 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, dok je ukupne beta aktivnosti $1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, o čemu je bilo reči u poglavljju 1.9.

ASTM D 7283-06 metoda obuhvata merenje ukupne koncentracije alfa/beta aktivnosti u homegenizovanom uzorku vode. Primjenjuje se na alfa emitere čija je koncentracija aktivnosti iznad $0,037 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ($1 \text{ pCi} \cdot \text{l}^{-1}$) i beta emitere sa koncentracijama aktivnosti iznad $0,15 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ($4 \text{ pCi} \cdot \text{l}^{-1}$). Ova metoda može da se koristi i za direktna merenja ukupne alfa i beta aktivnosti u homogenim vodenim rastvorima sa

koncentracijom aktivnosti alfa emitera iznad $1,8 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ($50 \text{ pCi}\cdot\text{l}^{-1}$) i koncentracijom beta aktivnosti iznad $3,7 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ($100 \text{ pCi}\cdot\text{l}^{-1}$). Ova metoda se ne primjenjuje na uzorke koji sadrže radionuklide koji su isparljivi u uslovima analize. Metoda daje relativno brzu detekciju ukupne alfa/beta aktivnosti uz uslov da se ne radi o veoma niskim nivoima koncentracije aktivnosti. Ova metoda nije u stanju da razlikuje alfa čestice od beta čestica emitovane od strane radionuklida, tako da se ovom metodom ne mogu testirati pojedinačni radionuklidi koji su alfa i/ili beta emiteri (ASTM D 7283–06,, 2009).

Ukupna alfa i beta koncentracija aktivnosti se meri istovremeno tečnom scintilacionim spektrometrom koristeći alfa/beta diskriminator. Optimizovanjem (podešavanjem) alfa/beta diskriminacije, visoka efikasnost detekcije alfa i beta čestica može se postići prihvatljivim misklasifikacijama beta čestica u alfa višekanalnom analizatoru (MCA) i alfa čestica u beta MCA. Efikasnost detekcije alfa i beta čestica i kalibracija na tečnom scintilacionom sistemu određuje se primenom poznatih koncentracija aktivnosti ustanovljenih referentnim test radionuklidima koji imaju rezidualni sadržaj čvrstih materija i odnos koktel-rastvarač koji je uporediv sa ispitivanim uzorkom (ASTM D 7283–06,, 2009).

Svakako, kao što je napominjano i u prethodnim metodama, pre pripreme uzorka se podrazumeva da je već nastupila sekulatna radioaktivna ravnoteža između ^{222}Rn i ^{226}Ra .

U trenutku prikupljanja uzorka vode preporučuje se dodavanje određene zapremine 2M azotne kiseline u uzorak da se dovede pH do 2 ili manje (5 do 10 mL 2M azotne kiseline po litri uzorka je obično dovoljno). pH vrednost je potrebno proveriti trakom ili pH označavačem (ASTM D 7283–06,, 2009).

Ukoliko se traže rastvorene ukupne alfa i beta koncentracije aktivnosti, uzorak mora biti propušten kroz filter papir od 0,45 mikrona pre dodatka kiseline koja ima funkciju da eliminiše uticaj polimerizacije, nastanak koloidnih formacija i prekoncentrovanja sporim uparavanjem. Uzorci piјače vode se obično ne filtriraju pre analize ukoliko je zamućenje $> 5 \text{ NTU}$. Upotreba usisavanja i pritiska ubrzava proces filtracije. Ako su uzorci prikupljeni bez zaštite, njih treba dostaviti u laboratoriju što je brže moguće, ali ne kasnije od 5 dana nakon uzimanja. Nakon prijema u laboratoriji, uzorci mogu biti filtrirani, po potrebi, a potom dodata kiselina. Jednom zakišljenii uzorci u laboratori bi trebalo držati minimum 16 h pre početka pripreme uzorka.

Za merenje ukupne alfa/beta koncentracije aktivnosti scintilacioni brojač se mora kalibrirati da bi se odredila efikasnost detekcije alfa čestica u alfa regionu od interesa (ROI-prozor), efikasnost detekcije efikasnost alfa čestica u beta ROI, efikasnost detekcije beta čestica u beta ROI i efikasnost beta čestica u alfa ROI. Za ukupnu alfa kalibraciju koriste se sledeći radionuklidi koji su u upotrebi: ^{241}Am , ^{239}Pu , ^{230}Th , i prirodni uran (koji sadrži ^{234}U , ^{235}U , i ^{238}U u odgovarajućim odnosima). Za kalibraciju ukupne beta aktivnosti koriste se sledeći radionuklidi: $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ i $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.

Kalibracija se vrši pripremom jedne boćice sa alfa i jedne sa beta standardom. Obično se koriste boćice od 20 ml u koje se dodaje 5 ml uzorka aktivnosti $200 \text{ Bq} + 0,1\text{M HNO}_3 + 15 \text{ ml scintilacionog koktela}$.

Podešavanja se vrše za različite vrednosti diskriminatora (tzv. parametra PSA) u zavisnosti od tzv. "spillover" faktora (faktofa prelivanja alfa čestica u beta prozoru i obrnuto) u preseku te dve krive se nalazi optimalna vrednost PSA parametra.

Zapremina uzorka se smanjuje uparavanjem u peščanom kupatilu na temperaturu od 99°C -100°C, do približno 4 ili 5 ml (polako, bez prskanja ili ključanja vode), potom se uzorak meša sa 0.1M HNO₃ i scintilacionim koktelom u pogodnim staklenim vialima sa malim sadržajem ^{40}K (jer ovaj radionuklid može doprinositi ukupnoj alfa/beta aktivnosti). Uparavanje uzorka se vrši do suvog ostatka i traje najmanje 15 h, takođe u staklenim vialima prečnika 28 mm i visine 62 mm. Potrebna količina vode za uparavanje jednog uzorka iznosi 200 ml. Masa suvog ostatka se meri osetljivom elektonskom vagom, do na četvrtu decimalu i daje red veličine 500 mg. Masa ostataka se koristi kao "quench-indicating" parametar (QIP-faktor prigušenja koju utiče na deformaciju spektra).

Posle uparavanja postupak je sledeći: dodati 5 mL 0,1M HNO₃, slabo zatvoriti bočicu i polako grejati do se čvrsta supstanca rastvori. Ne dozvoliti da uzorak isparava. Dodati 15 ml scintilacionog koktela i dobro izmućkati. Dobijeni uzorak treba da bude bistar, homogeni rastvor bez faznog razdvajanja što je evidentno prisustvo emulzije ili odvojenih slojeva. Ne treba da postoji čvrstog ostataka u bočici (ASTM D 7283-06., 2009).

Prema samoj metodi definisane su i interferentni efekti koji mogu dovesti do podbačaja u brojanju rezultata. Tako problemi u klasifikaciji alfa i beta čestica mogu biti od značaja pri formiranju konačnog rezultata. Izlaganje prethodno UV svetlosti takođe može uticati, potom prisustvo nečistoća u vodi može dovesti do takozvanih *quench efekata* koji mogu deformisati spektar i umanjiti rezultat.

3.3.3.1.2.1 Proračuni

1. Efikasnost detekcije

Za svaku od alfa kalibracija, potrebno je izračunati efikasnost detekcije alfa čestica u alfa ROI, $\varepsilon_{\alpha\alpha}$, i efikasnost detekcije alfa čestica u beta ROI, $\varepsilon_{\alpha\beta}$, primenom sledećih relacija:

$$\varepsilon_{\alpha\alpha} = \frac{R_{\alpha\alpha} - R_{\alpha b}}{C_\alpha \cdot V_{s\alpha}} \quad 3.6$$

$$\varepsilon_{\alpha\beta} = \frac{R_{\alpha\beta} - R_{\beta b}}{C_\alpha \cdot V_{s\alpha}} \quad 3.7$$

gde je :

$\varepsilon_{\alpha\alpha}$ – efikasnost detekcije alfa čestica u alfa-ROI (alfa prozoru),

$\varepsilon_{\alpha\beta}$ – efikasnost detekcije alfa čestica u beta-ROI,

$R_{\alpha\alpha}$ – odbroj kalibracionog standarda (alfa-emitera) u alfa-ROI [s⁻¹],

$R_{\alpha b}$ – odbroj matrice/*blank-a* u alfa-ROI [s^{-1}],

$R_{\alpha \beta}$ – odbroj kalibracionog standarda (alfa-emitera) u beta-ROI [s^{-1}],

$R_{\beta b}$ – odbroj matrice/*blank-a* u beta-ROI [s^{-1}],

C_α – koncentracija aktivnosti referentnog alfa-standarda [$\text{Bq} \cdot \text{ml}^{-1}$],

$V_{s\alpha}$ – zapremina referentnog alfa-standarda spajkovanog u vial [ml].

Za svaku od beta kalibraciju, potrebno je izračunati efikasnost detekcije beta čestica u beta ROI, $\varepsilon_{\beta\beta}$, i efikasnost detekcije beta čestica u alfa ROI, $\varepsilon_{\beta\alpha}$, primenom sledećih relacija:

$$\varepsilon_{\beta\beta} = \frac{R_{\beta\beta} - R_{\beta b}}{C_\beta \cdot V_{s\beta}} \quad 3.8$$

$$\varepsilon_{\beta\alpha} = \frac{R_{\beta\alpha} - R_{\alpha b}}{C_\beta \cdot V_{s\beta}} \quad 3.9$$

gde je :

$\varepsilon_{\beta\beta}$ – efikasnost detekcije beta čestica u beta-ROI (beta prozoru),

$\varepsilon_{\beta\alpha}$ – efikasnost detekcije beta čestica u alfa-ROI,

$R_{\beta\beta}$ – odbroj kalibracionog standarda (beta-emitera) u beta-ROI [s^{-1}],

$R_{\beta b}$ – odbroj matrice/*blank-a* u beta-ROI [s^{-1}],

$R_{\beta\alpha}$ – odbroj kalibracionog standarda (beta-emitera) u alfa-ROI [s^{-1}];

$R_{\alpha b}$ – odbroj matrice/*blank-a* u alfa-ROI [s^{-1}];

C_β – koncentracija aktivnosti referentnog beta-standarda [$\text{Bq} \cdot \text{ml}^{-1}$],

$V_{s\beta}$ – zapremina referentnog beta-standarda spajkovanog u vial [ml].

2. Faktor prelivanja – “spillover” faktor

Spillover faktori alfa u beta ROI (X_α) i beta u alfa ROI (X_β) i njihove merne nesigurnosti $u^2(X_\alpha)$ i $u^2(X_\beta)$, respektivno, računaju se prema metodi (ASTM D 7283–06,, 2009) kao:

$$X_\alpha = \frac{\varepsilon_{\alpha\beta}}{\varepsilon_{\alpha\alpha}} \quad 3.10$$

$$u^2(X_\alpha) = X_\alpha^2 \left(\frac{u^2(\varepsilon_{\alpha\beta})}{\varepsilon_{\alpha\beta}^2} - \frac{u^2(\varepsilon_{\alpha\alpha})}{\varepsilon_{\alpha\alpha}^2} \right) \quad 3.11$$

$$X_\beta = \frac{\varepsilon_{\beta\alpha}}{\varepsilon_{\beta\beta}} \quad 3.12$$

$$u^2(X_\beta) = X_\beta^2 \left(\frac{u^2(\varepsilon_{\beta\alpha})}{\varepsilon_{\beta\alpha}^2} - \frac{u^2(\varepsilon_{\beta\beta})}{\varepsilon_{\beta\beta}^2} \right) \quad 3.13$$

3. Određivanje alfa/beta odbroja i njihovih mernih nesigurnosti

Neto odbroj uzorka u alfa – ROI, R_α [s^{-1}], i njegova greška merenja $u(R_\alpha)$ računaju se kao

$$R_\alpha = R_{\alpha\alpha} - R_{ab} \quad 3.14$$

$$u(R_\alpha) = \sqrt{\frac{R_{\alpha\alpha}}{t_s} - \frac{R_{ab}}{t_s}} \quad 3.15$$

gde je:

$R_{\alpha\alpha}$ – odbroj uzorka u alfa – ROI [s^{-1}],

R_{ab} – odbroj *background-a* u alfa – ROI [s^{-1}],

t_s, t_b – vreme merenja uzorka i *background-a*, respektivno, [s].

Neto odbroj uzorka u beta – ROI, R_β [s^{-1}], i njegova greška merenja $u(R_\beta)$ računaju se kao:

$$R_\beta = R_{\beta\beta} - R_{\beta b} \quad 3.16$$

$$u(R_\beta) = \sqrt{\frac{R_{\beta\beta}}{t_s} - \frac{R_{\beta b}}{t_b}} \quad 3.17$$

gde je:

$R_{\beta\beta}$ – odbroj uzorka u beta – ROI [s^{-1}],

$R_{\beta b}$ – odbroj *background-a* u beta – ROI [s^{-1}].

Na kraju, korigovani alfa/beta odbroji – R'_α i R'_β – tj. alfa/beta neto odbroji korigovani spilover faktorom alfa/beta misklasifikacije, a zatim i standardne nesigurnosti ovih korigovanih odbroja $u_c(R'_\alpha)$ i $u_c(R'_\beta)$ – računaju se prema sledećim relacijama:

$$R'_\alpha = \frac{R_\alpha - R_\beta X_\beta}{1 - X_\alpha X_\beta} \quad 3.18$$

$$R'_\beta = \frac{R_\beta - R_\alpha X_\alpha}{1 - X_\alpha X_\beta} \quad 3.19$$

$$u_c(R'_\alpha) = \sqrt{\frac{u^2(R_\alpha) + X_\beta^2 u^2(R_\beta) + R'_\alpha^2 X_\beta^2 u^2(X_\alpha) + R'_\beta^2 u^2(X_\beta)}{1 - X_\alpha X_\beta}} \quad 3.20$$

$$u_c(R'_\beta) = \sqrt{\frac{u^2(R_\beta) + X_\alpha^2 u^2(R_\alpha) + R'_\beta^2 X_\alpha^2 u^2(X_\beta) + R'_\alpha^2 u^2(X_\alpha)}{1 - X_\alpha X_\beta}} \quad 3.21$$

4. Određivanje ukupne alfa/beta koncentracije aktivnosti i njihovih mernih nesigurnosti

Ukupna koncentracija alfa aktivnosti i njena merna nesigurnost određuju se na osnovu relacije:

$$AC_\alpha = \frac{R'_\alpha}{\varepsilon_{\alpha\alpha} \cdot V} \quad 3.22$$

$$u_c(AC_\alpha) = \sqrt{\frac{u_c^2(R'_\alpha)}{\varepsilon_{\alpha\alpha}^2 V^2} + AC_\alpha^2 \cdot \left(\frac{u^2(V)}{V^2} + \frac{1 + X_\alpha X_\beta}{1 - X_\alpha X_\beta} \cdot \frac{u^2(\varepsilon_{\alpha\alpha})}{\varepsilon_{\alpha\alpha}^2} \right)} \quad 3.23$$

gde su:

AC_α – ukupna alfa koncentracija aktivnosti uzorka [Bq·l⁻¹],

V – zapremina uzorka [l],

$u_c(AC_\alpha)$ – kombinovana standardna nesigurnost ukupne alfa aktivnosti uzorka [Bq·l⁻¹].

Ukupna koncentracija beta aktivnosti i njena merna nesigurnost dobijaju se na osnovu izraza:

$$AC_\beta = \frac{R'_\beta}{\varepsilon_{\beta\beta} \cdot V} \quad 3.24$$

$$u_c(AC_\beta) = \sqrt{\frac{u_c^2(R'_\beta)}{\varepsilon_{\beta\beta}^2 V^2} + AC_\beta^2 \cdot \left(\frac{u^2(V)}{V^2} + \frac{1 + X_\alpha X_\beta}{1 - X_\alpha X_\beta} \cdot \frac{u^2(\varepsilon_{\beta\beta})}{\varepsilon_{\beta\beta}^2} \right)} \quad 3.25$$

gde su:

AC_β – ukupna beta koncentracija aktivnosti uzorka [Bq·l⁻¹],

$u_c(AC_\beta)$ – kombinovana standardna nesigurnost ukupne beta aktivnosti uzorka [Bq·l⁻¹].

Standardne nesigurnosti koje su uslovljene samo statistikom brojanja računaju se kao:

$$u_{cc}(AC_\alpha) = \frac{\sqrt{u^2(R_\alpha) + X_\beta^2 u^2(R_\beta)}}{\varepsilon_{\alpha\alpha} \cdot V \cdot (1 - X_\alpha X_\beta)} \quad 3.26$$

$$u_{cc}(AC_\beta) = \frac{\sqrt{u^2(R_\beta) + X_\alpha^2 u^2(R_\alpha)}}{\varepsilon_{\beta\beta} \cdot V \cdot (1 - X_\alpha X_\beta)} \quad 3.27$$

5. Granice detekcije ukupnih alfa/beta aktivnosti

Poređenjem neto alfa odbroja, (R_α), sa kritičnom vrednošću neto odbroja korigovanom *spillover* faktorom, ($R_{\alpha C}$), odlučuje se da li je alfa aktivnost detektovana u nekom uzorku,

$$R_{\alpha C} = R_\beta X_\beta + 1,645 \sqrt{\frac{R_{\alpha+\beta} X_\beta}{t_s} + (R_{\alpha b} + X_\beta^2 R_{\beta b}) \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)} \quad 3.28$$

gde je:

$$R_{\alpha+\beta} = \begin{cases} R_\alpha + R_\beta & \text{ako je } R_\alpha + R_\beta \geq 0, \\ 0 & \text{ako je } R_\alpha + R_\beta < 0. \end{cases}$$

Ukliko je $R_\alpha > R_{\alpha C}$, alfa aktivnost je prisutna u uzorku. Kada se koristi prethodni uslov kao odluka o detekciji, računamo apriori minimalnu detektibilnu koncentraciju (MDC) za alfa koncentraciju aktivnosti kao:

$$MDC_\alpha = \frac{2,71 \frac{1 + X_\alpha X_\beta^2}{t_s(1 - X_\alpha X_\beta)} + 3,29 \sqrt{\frac{AC_\beta V \varepsilon_{\beta\alpha} (1 + X_\beta)}{t_s} + (R_{\alpha b} + X_\beta^2 R_{\beta b}) \cdot \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)}}{\varepsilon_{\alpha\alpha} \cdot V \cdot (1 - X_\alpha X_\beta)} \quad 3.29$$

gde je:

AC_β – specifična ukupna beta koncentracija aktivnosti uzorka [Bq·l⁻¹], (nenegativna),

t_s, t_b , - vreme merenja uzorka i *background-a* [s],

$\varepsilon_{\alpha\alpha}$ – efikasnost detekcije alfa čestice u alfa-ROI,

$\varepsilon_{\beta\alpha}$ – efikasnost detekcije beta čestice u alfa ROI ($\varepsilon_{\beta\alpha} = \varepsilon_{\beta\beta} \cdot X_\beta$).

Poređenjem neto beta odbroja, (R_β), sa kritičnom vrednošću neto odbroja korigovanom *spillover* faktorom, ($R_{\beta C}$), odlučuje se da li je beta aktivnost detektovana u nekom uzorku,

$$R_{\beta C} = R_\alpha X_\alpha + 1,645 \sqrt{\frac{R_{\alpha+\beta} X_\alpha}{t_s} + (R_{\beta b} + X_\alpha^2 R_{\alpha b}) \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)} \quad 3.30$$

Ukliko je $R_\beta > R_{\beta C}$, beta aktivnost je prisutna u uzorku. Kada se koristi prethodni uslov kao odluka o detekciji, računamo apriori minimalnu detektibilnu koncentraciju (MDC) za beta koncentraciju aktivnosti kao:

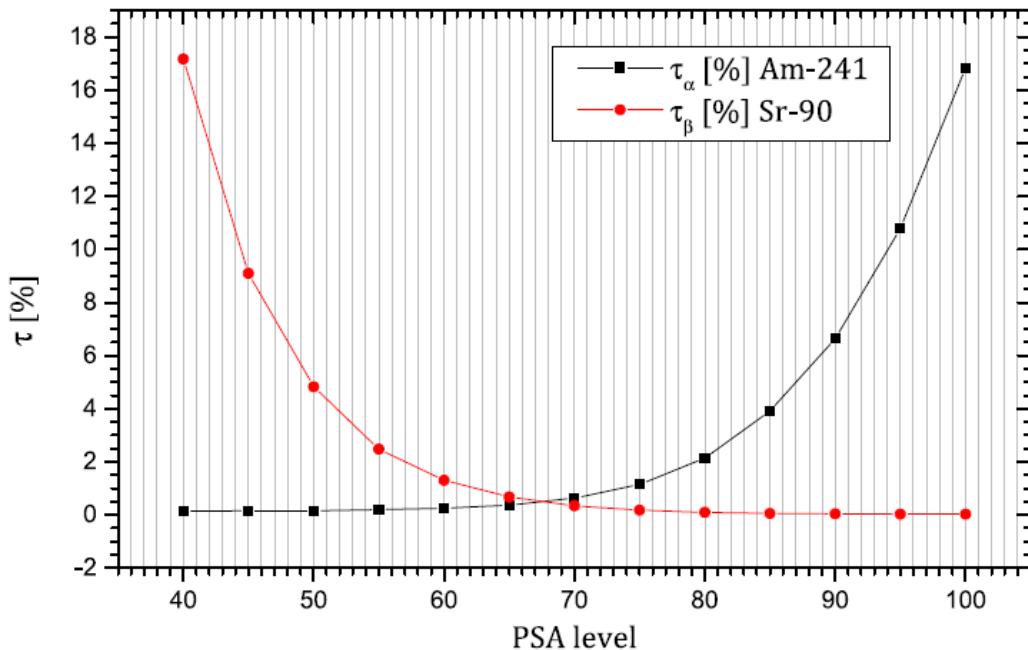
$$MDC_\beta = \frac{2,71 \frac{1 + X_\beta X_\alpha^2}{t_s(1 - X_\alpha X_\beta)} + 3,29 \sqrt{\frac{AC_\alpha V \varepsilon_{\alpha\beta} (1 + X_\alpha)}{t_s} + (R_{\beta b} + X_\alpha^2 R_{\alpha b}) \cdot \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)}}{\varepsilon_{\beta\beta} \cdot V \cdot (1 - X_\alpha X_\beta)} \quad 3.31$$

gde je:

AC_α – specifična ukupna alfa koncentracija aktivnosti uzorka [$\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$], (nenegativna),

$\varepsilon_{\beta\beta}$ – efikasnost detekcije beta čestice u beta-ROI,

$\varepsilon_{\alpha\beta}$ – efikasnost detekcije alfa čestice u beta ROI, ($\varepsilon_{\alpha\beta} = \varepsilon_{\alpha\alpha} \cdot X_\alpha$).



Slika 3.18 Podešavanje PSA parametra za merenja ukupne alfa/beta aktivnosti (merenjem

referentnih standarda ^{241}Am , $E_{\alpha max} \sim 5,5 \text{ MeV}$ i ^{90}Sr $E_{\beta max} = 0,546/2,28 \text{ MeV}$, oba

koncentracija aktivnosti $40 \text{ Bq}\cdot\text{ml}^{-1}$, prema preporuci ASTM metode) (Stojković I. , et al., 2015)

Efikasnosti detekcije i misklasifikacioni faktori izračunavaju se na osnovu merenja kalibraciionih standarda alfa i beta emitera i *blank* uzorka (obične destilovane vode) za dati odnos uzorak/scintilacioni koktel, bez korekcije na *quench* efekte. Za kalibraciju su korišćeni ^{214}Am i ^{90}Sr sa rezultatima u radu (Stojković, Ivana; Tenjović, Branislava; Nikolov, Jovana; Todorović, Nataša, 2015), tako da nisu rađena nikakva podešavanja spektrometra Quantulus 1200TM na kome su mereni uzorci. U radu pomenutih autora je pronađen optimalni PSA diskriminator koji je iznosio 68 (slika 3.18)¹¹ i sva merenja su vršena na toj vrednosti. Kao scintilacioni koktel korišćen je OptiPhase HiSafe 3.

3.3.3.1.2.2 Rezultati i diskusija

Nakon uparavanja uzorka prema opisanoj proceduri, potom rastvaranja i dodavanja azotne kiseline i scintilacionih koktela u staklene viale od 20ml vršeno je merenje za iste koncentracije aktivnosti kao i u prethodnoj metodi. Ukupno vreme merenja svih uzoraka iznosilo je 300 min.

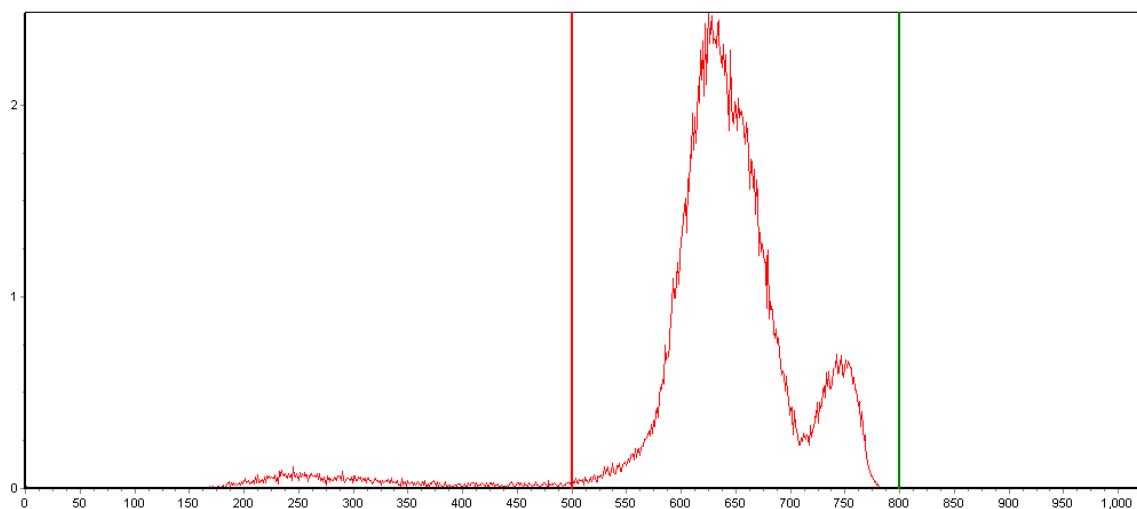
Na osnovu snimljenih spektara iz softverskog programa *EasyView* je očitavan odbroj i to:

$R_{\alpha\beta}$ – za kanale u rasponu 1-1024,

$R_{\alpha\alpha}$ – za kanale 500-800,

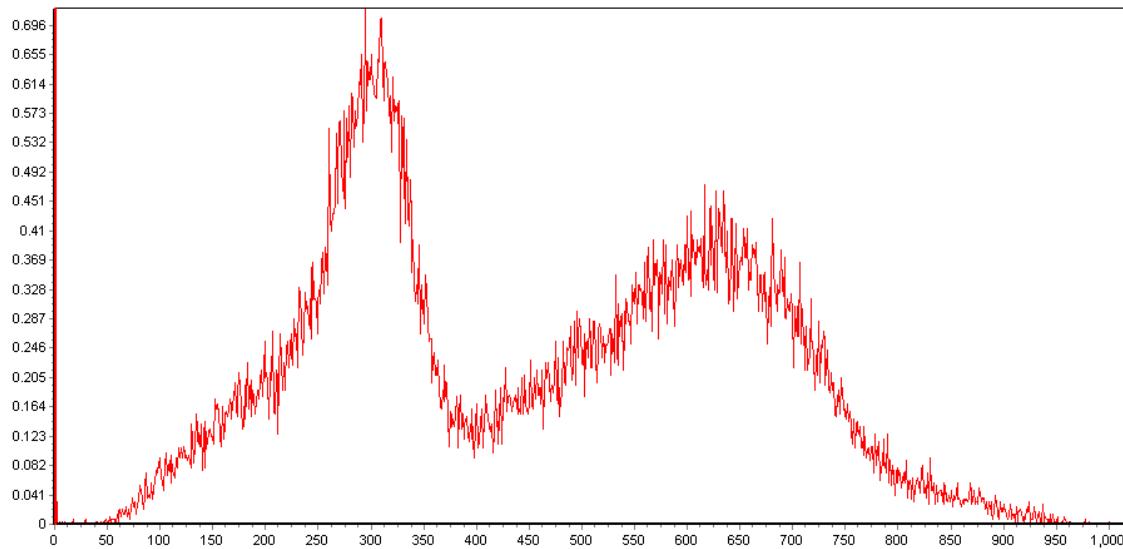
$R_{\beta\alpha}$ – za kanale 500-800,

$R_{\beta\beta}$ – za kanale 1-1024 (Stojković I., Tenjović, Nikolov, & Nataša Todorović, 2017).



Slika 3.19 Alfa spektar uzorka broj 3 (ROI 500-800 kanala)

¹¹ Gde τ_α i τ_β predstavljaju faktore koju se računaju kao odnos alfa odbroja u beta ROI i ukupnog broja alfa odbroja za τ_α dok za τ_β kao odnos beta odbroja u alfa ROI podeljen sa ukupnim beta odbrojem, pomnoženi sa 100 u [%].



Slika 3.20 Beta spektar uzorka broj 3 (ROI 1-1024 kanala)

Ukupni alfa i beta spektri uzorka broj 3 prikazani su na slikama 3.19 i 3.20 u navedenim kanalima. Jasno se uočavaju prilično dobro definisani spektri, što se svakako pripisuje dovoljnoj vremenskoj dužini brojanja.

Izračunate efikasnosti detekcije za sve uzorke su bibližno jednake i iznose: $\varepsilon_{\alpha\alpha} \approx 99\%$, $\varepsilon_{\beta\beta} \approx 195\%$, $\varepsilon_{\alpha\beta} \approx 0,22\%$, $\varepsilon_{\beta\alpha} \approx 0,99\%$.

Izmerene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra prema ovoj metodi za svih pet uzoraka prikazane su u Tabeli 3.12. Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra su predstavljene i za alfa i za beta-ROI.

Tabela 3.12 Eksperimentalni rezultati koncentracija aktivnosti ^{226}Ra dobijeni metodom ASTM D 7283-06 u alfa i beta ROI

Uzorak broj	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [Bq·l ⁻¹]	ASTM metoda C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Vreme merenja [min]	Merna nesigurnost [%]	C_{exp} / C_0
1.	$0,3967 \pm 0,002$	$C_{\alpha} = 1,247 \pm 0,020$ $C_{\beta} = 0,477 \pm 0,022$	300	1,6 4,61	3,14 1,20
2.	$1,587 \pm 0,008$	$C_{\alpha} = 3,48 \pm 0,03$ $C_{\beta} = 1,416 \pm 0,025$		0,86 1,77	2,19 0,89
3.	$3,97 \pm 0,02$	$C_{\alpha} = 13,48 \pm 0,17$ $C_{\beta} = 5,51 \pm 0,09$	300	1,26 1,63	3,4 1,39
4.	$7,93 \pm 0,03$	$C_{\alpha} = 17,37 \pm 0,10$ $C_{\beta} = 7,48 \pm 0,05$		0,58 0,67	2,19 0,94
5.	$9,92 \pm 0,05$	$C_{\alpha} = 37,4 \pm 0,4$ $C_{\beta} = 14,76 \pm 0,18$		1,07 1,22	3,77 1,49

Jasno se može uočiti da su u alfa-ROI izmerene drastično više koncentracije aktivnosti nego što su referentne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , gde je odnos C_{exp}/C_0 u rasponu od **2,19** do **3,77**. Dosta bolje slaganje između izmerenih i referentnih vrednosti je u beta ROI gde je odnos C_{exp}/C_0 u rasponu od 0,89 do 1,49, što je prihvatljivije ali i dalje nedovoljno precizno. Merne nesigurnosti kojima su predstavljeni rezultati su drastično niske, kreću se u intervalu od 0,67% do 4,61% za koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u beta ROI i od 0,58% do 1,6% za koncentracije aktivnosti u alfa ROI.

Slični rezultati za istu metodu dobijeni su u radu (Çakal, Güven, & Yücel, 2015). Zbog neslaganja izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra sa referentnim vrednostima prirodno se nameće to da je potrebno korigovati dobijene rezultate.

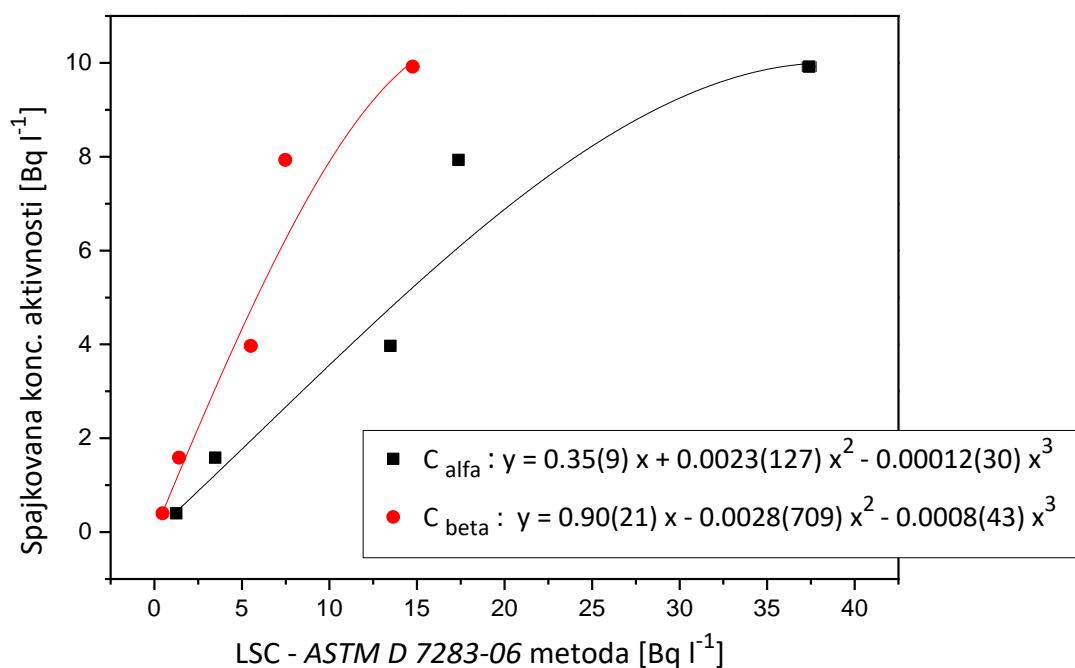
3.3.3.1.2.2.1 Korekcija eksperimentalnih rezultata

Pošto je uočena velika fluktuacija rezultata u alfa i beta ROI, potrebno je izvršiti korekciju treženjem optimalne zavisnosti između eksperimentalnih i referentnih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , kao i u prethodne tri metode.

Nadene optimalne funkcije za alfa i beta ROI predstavljene su na slici 3.21. Obe funkcije imaju kubni karakter i kao takve daju najbolju korelaciju između izmerenih i referentnih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra . Matematički zapisi tih funkcija su :

$$C_\alpha = -0,00012 \cdot x^3 + 0,0023 \cdot x^2 + 0,35 \quad 3.32$$

$$C_\beta = -0,0008 \cdot x^3 - 0,0023 \cdot x^2 + 0,90 \quad 3.33$$



Slika 3.21 Korelacione funkcije između referentnih i izmerenih vrednosti za ^{226}Ra u alfa i beta-ROI, metoda LSC ASTM D 7283-06

Preračunavanjem vrednosti iz Tabele 3.12 preko optimalnih funkcija (relacije 3.32 i 3.33, gde x predstavlja izmerenu vrednost koncentracija aktivnosti ^{226}Ra prema metodi ASTM D 7283-06 u $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, za alfa i beta ROI) dobijaju se korigovane vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra predstavljene u Tabeli 3.13.

Nakon izvršene korekcije dobijene se vrednosti čija su slaganja sa referentnim vrednostima znatno poboljšana. Odnos C_{cor}/C_0 se kreće u intervalu od 0,77 (uzorak broj 4) do 1,22, (uzorak broj 3), za koncentraciju aktivnosti u alfa ROI što je u poređenju sa rezultatima datim u Tabeli 3.12 dva do tri puta manji, odnosno prihvatljiviji rezultat.

Tabela 3.13 Korigovani eksperimentalni rezultati koncentracija aktivnosti ^{226}Ra dobijeni metodom ASTM D 7283-06 u alfa i beta ROI prema korelacionim funkcijama

Uzorak broj	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [$\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$]	ASTM metoda C_{exp} [$\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [$\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$]	C_{cor}/C_0
1.	$0,3967 \pm 0,002$	$C_\alpha = 1,247 \pm 0,020$ $C_\beta = 0,477 \pm 0,022$	$C_\alpha = 0,440 \pm 0,020$ $C_\beta = 0,429 \pm 0,022$	1,11 1,08
2.	$1,587 \pm 0,008$	$C_\alpha = 3,48 \pm 0,03$ $C_\beta = 1,416 \pm 0,025$	$C_\alpha = 1,24 \pm 0,03$ $C_\beta = 1,267 \pm 0,025$	0,78 0,80
3.	$3,97 \pm 0,02$	$C_\alpha = 13,48 \pm 0,17$ $C_\beta = 5,51 \pm 0,09$	$C_\alpha = 4,84 \pm 0,17$ $C_\beta = 4,74 \pm 0,09$	1,22 1,19
4.	$7,93 \pm 0,04$	$C_\alpha = 17,37 \pm 0,10$ $C_\beta = 7,48 \pm 0,05$	$C_\alpha = 6,14 \pm 0,10$ $C_\beta = 6,24 \pm 0,05$	0,77 0,79
5.	$9,92 \pm 0,05$	$C_\alpha = 37,4 \pm 0,4$ $C_\beta = 14,76 \pm 0,18$	$C_\alpha = 10,0 \pm 0,4$ $C_\beta = 10,10 \pm 0,18$	1,01 1,02

Odnos C_{cor}/C_0 za koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra u beta-ROI je takođe redukovan posle korekcije, uzorcima 1, 3 i 5 te vrednosti su pomerene ka jedinici, dok je za uzorke 2 i 4 taj odnos dodatno smanjen, tako da oni i posle korekcije imaju drastična odstupanja od referentnih vrednosti.

Korekcija mernih nesigurnosti nije izvršena jer bi se njome greška pomerila na četvrtu ili petu decimalu, tako bi greska bila drastično manja od 1% što je malo verovatno u realnosti, pogotovo sa ovakvom fluktuacijom u rezultatima.

3.3.3.1.2.3 Snimanje minimalne detektibilne aktivnosti (MDA) za LSC ASTM D 7283-06 metodu

MDA¹² se za ovu metodu računa za svaki uzorak zasebno, za alfa i beta ROI, kao što je dano relacijama 3.29 i 3.31. Izračunate minimalne detektibilne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra za svaki od uzoraka date su u Tabeli 3.14. Na osnovu rezultata iz Tabele 3.14 zaključuje se da što je veća referentna koncentracija aktivnosti ^{226}Ra veća je i minimalna detektibilna aktivnost.

Ono što se može takođe zaključiti jeste i to da je granica detekcije dosta niža u beta nego u alfa-ROI, na što ukazuje i odnos $\text{MDC}_\alpha / \text{MDC}_\beta$ koji za ovih 5 uzoraka ima raspon od 1,16 pa do 6,13.

Zavisnosti MDC_α i MDC_β od referentne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra iz Tabele 3.14 date su na slikama 3.22 i 3.23.

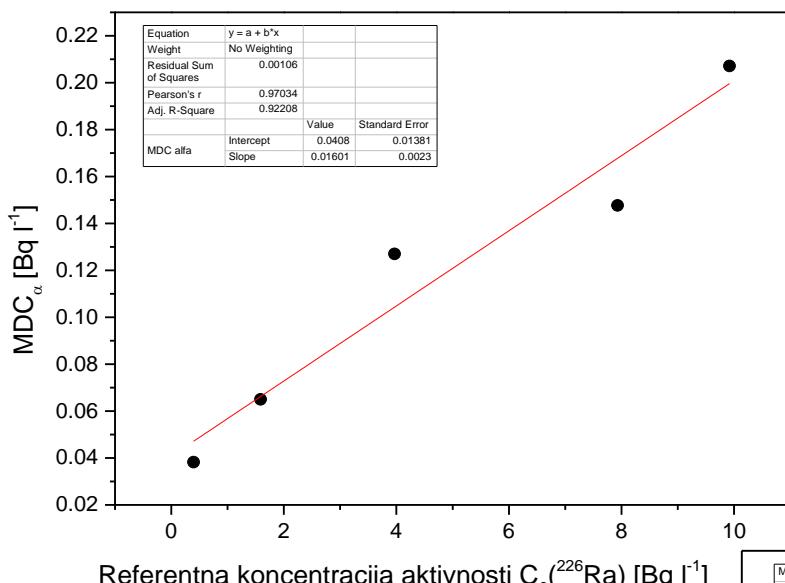
Tabela 3.14 MDA ($\text{MDC}_{\alpha/\beta}$) ^{226}Ra za pojedinačne uzorke merene metodom LSC ASTM D 7283-06

Uzorak broj	Referentna koncentracija aktivnosti C_0 [$\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$]	MDC_α [$\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$]	MDC_β [$\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$]	$\text{MDC}_\alpha / \text{MDC}_\beta$
1.	$0,3967 \pm 0,002$	0,038225	0,03287	1,16
2.	$1,587 \pm 0,008$	0,064995	0,03293	1,97
3.	$3,97 \pm 0,02$	0,127015	0,033185	3,83
4.	$7,93 \pm 0,04$	0,14768	0,033305	4,43
5.	$9,92 \pm 0,05$	0,207155	0,033805	6,13

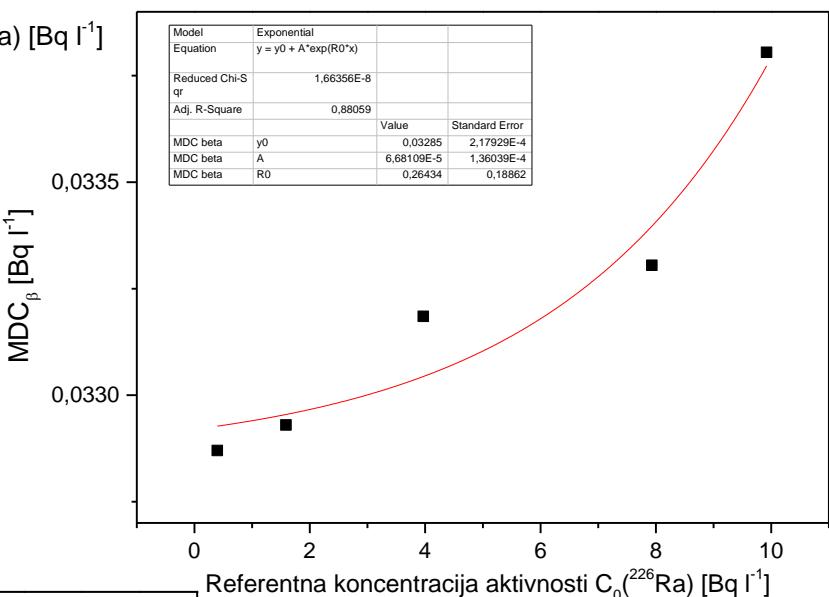
Ono što se može još uočiti jeste linearna korelacija između minimalne detektibilne aktivnosti ^{226}Ra u alfa-ROI sa referentnom koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra uz manja odstupanja uzoraka broj 3 i 4 (slika 3.22), a to potvrđuju i korelacioni parametri. Korelacija između MDC_β i referentne koncentracije aktivnosti je eksponencijalnog tipa, što je prikazano na slici 3.23.

Poređenje ove dve zavisnosti prikazano je na slici 3.24, gde se jasno uočava drastično niža MDA (MDC) u beta-ROI.

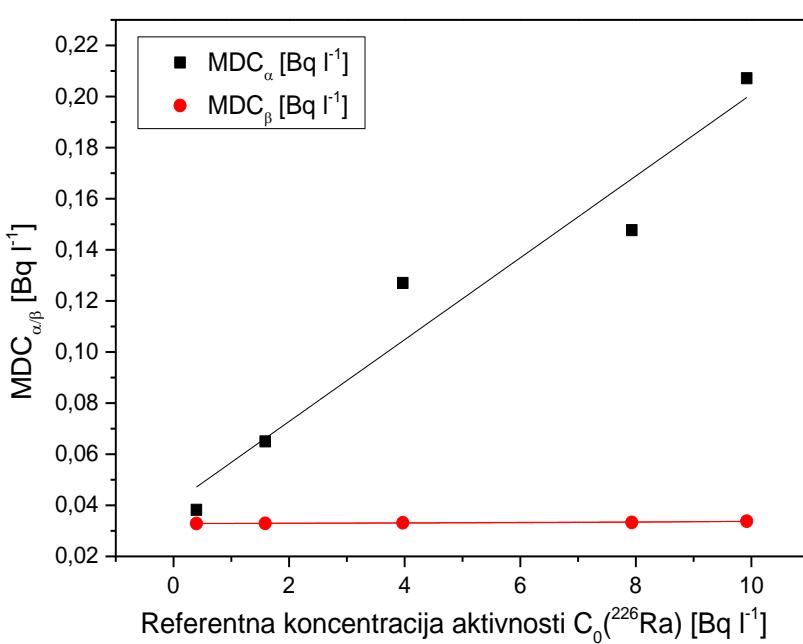
¹² Skraćenica MDA potiče od engleske formulacije *Minimal Detectable Activity*, dok se u samoj metodi (ASTM D 7283-06, 2009) koriste oznake MDC_α i MDC_β , koje se suštinski ne razlikuju od predašnje (MDA potiče od engleske formulacije *Minimal Detectable activity Concentration*), a označavaju minimalne detektibilne koncentracije aktivnosti u alfa i beta ROI, respektivno.



Slika 3.22 Zavisnost MDC_α od referentne koncentracije aktivnosti C₀(²²⁶Ra) u [Bq·l⁻¹]



Slika 3.23 Zavisnost MDC_β od referentne koncentracije aktivnosti C₀(²²⁶Ra) u [Bq·l⁻¹]



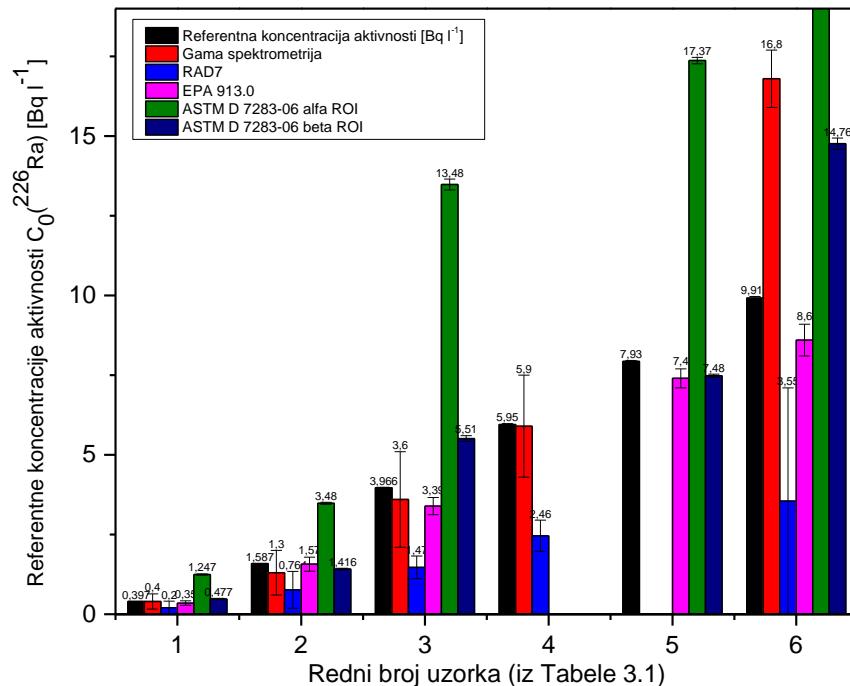
Slika 3.24 Poređenje zavisnost MDC_α i MDC_β od referentne koncentracije aktivnosti C₀(²²⁶Ra) u [Bq·l⁻¹]

4. Poređenje metoda

U ovom master radu je prikazano poređenje različitih mernih tehnika i metoda za određivanje ^{226}Ra u vodi. Korišćena je gama spektrometrija, alfa spektrometrija detektorom RAD7, i tečna scintilaciona spektrometrija detektorom Quantulus 1220TM. Njihove karakteristike date su u Tabeli 4.2.

Pre početka merenja čekano je nastupanje sekularne radioaktivne ravnoteže između ^{222}Rn i ^{226}Ra , a što je praćeno gama spektrometrijom i dato u odeljku 3.3.1.2. (slika 3.3). Nakon toga vršeno je merenje ^{226}Ra sa četiri različite metode.

Poređenje rezultata izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra sa sve četiri metode prikazano je na slikama 4.1 i 4.2 i u Tabeli 4.1. Sa slike 4.1 jasno se primećuje da metoda LSC ASTM D 7283-06 daje previsoke koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u alfa-ROI, dok se u beta-ROI dobijaju znatno niže vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra . Uočava se i to da alfa spektrometrija detektorom RAD7 daje previše niske koncentracije aktivnosti, ona je bez korekcije meri polovične vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , za više koncentracije aktivnosti ^{226}Ra čak i niže. Gama spektrometrija daje relativno prihvatljive vrednosti na nižim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra , dok za više koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , daje vrednosti više za 70% od referentne (uzorak broj 6, Tabela 4.1), što bez korekcije ne sme biti prihvatljivo. LSC EPA 913.0 daje najbolje slaganje referentnih i izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , što se i vidi sa slike 4.1 i iz Tabele 4.1.

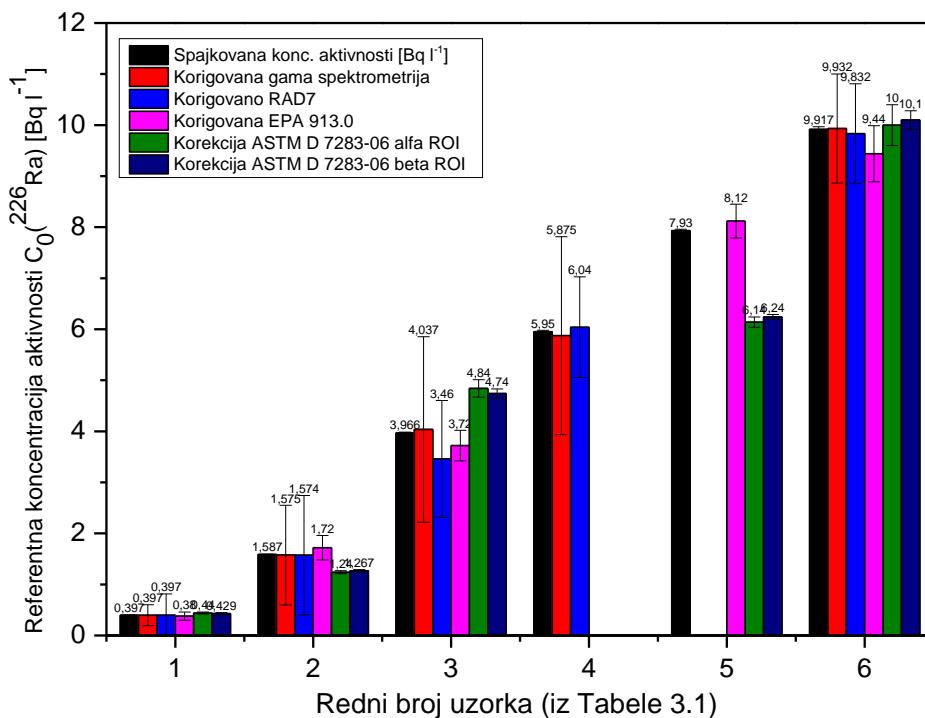


Slika 4.1 Poređenje izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra za sve četiri metode

Zbog neslaganja rezultata dobijenih navedenim metodama, izvršena je korekcija optimalnim funkcijama koje predstavljaju korelaciju između izmerenih i referentnih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra (poglavlje br. 3). Korigovane vrednosti koncentracija aktivnosti predstavljene su histogramski na slici 4.2. Ono što je

zajednično za sve metode je da su svi rezultati nakon korekcije optimalnim funkcijama znatno poboljšani i približeni referentnim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra .

Što je nađena bolja korelaciona funkcija, gde eksperimentalne tačke odstupaju sa minimalnim vrednostima, bolje je i samo slaganje sa referentnim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra . To se uspelo ostvariti kod gama spektrometrije, alfa spektrometrije detektorom RAD7 i LSC EPA 913.0 metode. Najveće odstupanje tačaka od korelace funkcije uočeno je kod LSC ASTM D 7283-06 metode (slika 3.21) što je imalo posledice na same korigovane rezultate koncentracija aktivnosti ^{226}Ra datih u Tabeli 4.1.



Slika 4.2 Poređenje korigovanih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra optimalnim funkcijama za sve četiri metode

MDA za ^{226}Ra u vodi određen gama spektrometrijom iznosi $0,45 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ za 20 h merenja, alfa spektrometrijom na RAD7 detektoru granica detekcije za protokol Wat-250 iznosi $0,21 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ za 60 minuta merenja, za LSC mernu tehniku (EPA 913.0 metoda) MDA iznosi $0,1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ za 300 minuta merenja, a za LSC - ASTM D 7283-06 je $0,03 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ u beta-ROI za 300 minuta merenja, dok je MDA u beta-ROI za isto vreme merenja oko $0,04 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, kao što je i dato u Tabeli 4.2.

Na osnovu dobijenih vrednosti, može se zaključiti da je najbolje rezultate dala LSC - EPA 913.0 metoda na tečnom scintilacionom detektoru Quantulus 1220™. Ova metoda daje prilično dobro slaganje izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra sa referentnim, a to potvrđuje i mali faktor korekcije koji iznosi 1,1, što govori da je metoda prilično dobra i pouzdana. Metoda je brza, uzorak ne zahteva nikakvu hemijsku pripremu, zapremina uzorka iznosi svega 10 ml, a rezultat se dobija za 300 minuta. Poređenje datih metoda uporedivo je sa metodama u radu (Köhlera, et al., 2002).

Tabela 4.1 Poređenje rezultata dobijenih za sve tri merne tehnike, odnosno sve četiri metode za ispitivanje ^{226}Ra u vodi

Redni broj uzorka	Referentna konc. aktivnosti C_0 [Bq·l ⁻¹]	1 Metoda gama-spektrometrije		2 Alfa spektrometrija detektorom RAD7		LSC - Quantulus 1220TM			
		Izmerena konc. aktivnosti C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	Izmerena konc. aktivnosti C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	3 EPA 913.0		4 ASTM D 7283 – 06	
						Ultima Gold F scintilator		Izmerena konc. aktivnosti C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]
		Izmerena konc. aktivnosti C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	Izmerena konc. aktivnosti C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	Izmerena konc. aktivnosti C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]	Izmerena konc. aktivnosti C_{exp} [Bq·l ⁻¹]	Korigovana konc. aktivnosti C_{cor} [Bq·l ⁻¹]
1.	$0,397 \pm 0,002$	$0,40 \pm 0,24$	$0,397 \pm 0,204$	$0,20 \pm 0,21$	$0,397 \pm 0,416$	$0,35 \pm 0,07$	$0,38 \pm 0,08$	$C_\alpha = 1,247 \pm 0,020$ $C_\beta = 0,477 \pm 0,022$	$C_\alpha = 0,440 \pm 0,020$ $C_\beta = 0,429 \pm 0,022$
2.	$1,587 \pm 0,008$	$1,3 \pm 0,7$	$1,575 \pm 0,976$	$0,76 \pm 0,58$	$1,57 \pm 1,17$	$1,57 \pm 0,22$	$1,72 \pm 0,24$	$C_\alpha = 3,48 \pm 0,03$ $C_\beta = 1,416 \pm 0,025$	$C_\alpha = 1,24 \pm 0,03$ $C_\beta = 1,267 \pm 0,025$
3.	$3,97 \pm 0,02$	$3,6 \pm 1,5$	$4,04 \pm 1,82$	$1,47 \pm 0,36$	$3,46 \pm 1,15$	$3,39 \pm 0,27$	$3,72 \pm 0,30$	$C_\alpha = 13,48 \pm 0,17$ $C_\beta = 5,51 \pm 0,09$	$C_\alpha = 4,84 \pm 0,17$ $C_\beta = 4,74 \pm 0,09$
4.	$5,95 \pm 0,03$	$5,9 \pm 1,6$	$5,88 \pm 1,94$	$2,46 \pm 0,49$	$6,04 \pm 0,99$	-	-	-	-
5.	$7,93 \pm 0,03$	-	-	-	-	$7,40 \pm 0,30$	$8,12 \pm 0,33$	$C_\alpha = 17,37 \pm 0,10$ $C_\beta = 7,48 \pm 0,05$	$C_\alpha = 6,14 \pm 0,10$ $C_\beta = 6,24 \pm 0,05$
6.	$9,92 \pm 0,05$	$16,8 \pm 0,9$	$9,93 \pm 1,07$	$3,55 \pm 0,49$	$9,83 \pm 0,98$	$8,60 \pm 0,50$	$9,44 \pm 0,55$	$C_\alpha = 37,4 \pm 0,4$ $C_\beta = 14,76 \pm 0,18$	$C_\alpha = 10,0 \pm 0,4$ $C_\beta = 10,10 \pm 0,18$

Tabela 4.2 Poredenje karakteristika korišćenih metoda

Tehnika merenja ^{226}Ra u vodi	Metoda	Detektor	Način merenja	Zapremina uzorka	Vreme merenja uzoraka [min]	MDA [$\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$]	Vreme odbroja blank-a za MDA [min]
Gama spektrometrija	Direktna	HPGe , nominalne efikasnosti 35% i rezolucije (FWHM) od 1,77 keV, 12 cm zaštite od olova, brzine brojanja 2.0 s^{-1}	^{214}Bi (295,22 keV, 351,99 keV), ^{214}Pb (609,32 keV, 1120,38 keV, 1764,51 keV)	450 ml, Marineli geometrija	85-1130	0,45	1200
Alfa spektrometrija	Direktna	RAD7	^{222}Rn	250 ml	20	0,214 (Wat-250) 1,15 (Wat-40)	60
LSC	EPA 913.0	Quantulus 1220 TM	^{222}Rn	10 ml : 10 ml (odnos uzorak scintilacioni koktel Ultima Gold F) -Stakleni viali	300	0,049	1200
LSC	ASTM D 7283-06	Quantulus 1220 TM	Ukupna alfa/beta aktivnost	200 ml za uparavanje, dodanak 5 ml HNO_3 + 15 ml scintilacionog koktela OptiPhase HiSafe 3 -Stakleni viali	300	0,03 (beta-ROI) 0,04 (alfa-ROI)	300

5. Zaključci i pravci daljih istraživanja

Voda u realnosti često sadrži više radionuklida u različitim koncentracijama, koji doprinose ukupnoj alfa/beta aktivnosti. Zbog sve veće potrebe monitoringa pojedinačnih radionuklida a ne samo ukupne alfa/beta aktivnosti u vodama, javlja se potreba za pronalaskom optimalne metode koja za kratko vreme može da izmeri koncentraciju aktivnosti pojedinačnih radionuklida u pijaćoj vodi, sa odgovarajućom preciznošću. Brze metode ostvaruju se direktnim merenjima uzorkovane vode, bez dodatnih hemijskih tretmana kao što su separacija, prekoncentracija, filtracija i sl. Optimalna metoda podrazumeva nisku granicu detekcije, visoku efikasnost i što manju zapreminu uzorka vode koju koristi za ispitivanje.

U poglavlju 4, nađena je optimalna metoda za merenje ^{226}Ra u pijaćoj vodi -LSC EPA 913.0. Ova metoda jedina ne zahteva korekciju eksperimentalnih rezultata (korekcioni faktor veoma mali, 1,1) u odnosu na referentne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , dok su korekcije eksperimentalnih rezultata ostalih metoda neizbežne. Postavlja se pitanje koji to sve efekti utiču na umanjenje/povećanje rezultata preostale tri metode, kao i to da li mešanje vode sa scintilacionim koktelom Ultima Gold F dovodi do umanjenja *quench* efekata, i povećanja efikasnosti u odnosu na LSC-ASTM D 7283-06 metodu. Pravci daljih istraživanja jesu ispitivanje LSC-ASTM D 7283-06 metode i sa drugim scintilacionim koktelima, ne samo sa OptiPhase HiSafe 3. U ranijim istraživanjima je dokazano, da izbor scintilacionog koktela utiče na vezivanje radona, kao i na same konačne rezultate. Ova metoda se može koristiti i kao *direktna metoda* kao što je dato u (ASTM D 7283-06,, 2009) pod određenim uslovima, tako da su potrebna dalja ispitivanja i ove metode, takođe za različite scintilacione koktele, uz ispitivanje uticaja *quench* efekata.

LSC-ASTM D 7283-06 metoda je dala prilično loše rezultate kao što se vidi iz Tabele 4.1. Potrebno je ispitati uzroke neslaganja i njih dovesti u vezu sa *quench* efektima.. Zbog neslaganja u rezultatima izvršena je korekcija eksperimentalnih rezultata, što je prikazano u poglavlju 3.3.3.1.2.2.1. Teorijska predviđanja za ovu i ostale metode jesu, linearna korelaciona funkcija između izmerenih i referentnih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , sa korekcionim faktorom 1, što se u realnosti nije pokazalo, sem za metodu LSC-EPA 913.0. Korelaciona funkcija između referentnih i izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra je polinom trećeg stepena za ovu LSC metodu, gde se i nakon korekcije vidi neslaganje sa referentnim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , što upućuje na dalja istraživanja.

Sva LSC merenja na detektoru Quantulus 1220TM, vršena su na vrednosti PSA od 68, dobijen u preseku krivih ^{241}Am i ^{90}Sr kao što je dato u ranijim studijama. Takođe i vrednost ovog parametra može biti loše odabrana za merenje ^{226}Ra kao alfa emitera, jer ne postoji kalibracija izvršena upravo tim radionuklidom, što može uticati na ispravnost merenja ASTM D 7283-06 metode. Potrebno je izpitati kalibraciju i sa drugim alfa i beta emiterima, koji mogu dati i znatno viši PSA, kao što je prikazano u nekim ranijim istraživanjima

(Moreno, Vioque, Manjon, & Garcia-TENORIO:, 1999), radi postizanja boljih rezultata kod ove LSC metode.

Gama spektrometrijom ^{226}Ra se određuje iz njegovih potomaka ^{214}Bi i ^{214}Pb , kao što je dato u Tabeli 4.2. Pokazano je u poglavlju 3.3.1.2 da ova metoda daje prevelike koncentracije aktivnosti ^{226}Ra za pojedine uzorke, pa je korekcija rezultata bila neizbežna. Nađena korelacina funkcija za gama spektrometrijska merenja je eksponencijalnog karaktera (slika 3.4). Zanimljivo je potpuno dobro slaganje izmereneih koncentracija aktivnosti sa referentnim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra , prema tom zakonu (gde je korelacioni faktor $R^2=0,99$), bez odstupanja i jedne tačke, pa se stoga ovako nađena optimalna korelaciona funkcija preporučuje za dalja merenja ovog radionuklida ^{226}Ra metodom gama spektrometrije, za korekciju rezultata, kao kalibraciona funkcija. Ono što je bila loša strana ove metode jeste različito vreme merenja uzoraka vode. Pa se iz tog razloga preporučuje nalazak optimalnog vremena merenja, za koje bi bilo izvršeno merenje svih uzoraka, kao i za ostale metode (fiksno vreme merenja svih uzoraka), i poređenje novodobijene korelacione funkcije sa onom nađenom u poglavlju 3.3.1.2.1, (slika 3.4) .

Alfa spektrometrija detektorom RAD7 daje takođe prilično loše eksperimentalne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra . U ranijim ispitivanjima vršenim na ovom detektoru ustanovljeno je da on ne daje prikladne vrednosti bez korekcije (Stojković I. , et al., 2015). Traženjem korelacione funkcije između referentnih i izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra dobijena je eksponencijalna zavisnost, što je razmatrano u poglavlju 3.3.2.2.3, a predstavljeno na slici (3.12). Korelacioni faktor nađene funkcije je 0,98, što govori o prilično dobroj optimalnoj korelaciji, prema kojoj su eksperimentalne vrednosti približene referentnim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra . Ono što ostaje kao pitanje jeste nalazak objašnjenja loših nekorigovanih koncentracija aktivnosti. U daljim merenjima ^{226}Ra ovom mernom tehnikom preporučuje se korišćenje nađene korelacione funkcije (slika 3.12), kao kalibracione, dok glavne uzroke neslaganja rezultata treba tražiti u zaključcima datim u radu (Kappke, et al., 2011).

Na osnovu iznetih činjenica preporuka je i korišćenje metoda gama spektrometrije, alfa spektrometrije detektorom RAD7 i LSC-ASTM D 7283-06 kao *skrining* metoda, dok se korišćenje LSC-EPA 913.0 metode preporučuje kao najefikasnije rešenje za ispitivanje ^{226}Ra u pijaćoj vodi.

Iako se LSC tehnika pokazala kao najbolja za ispitivanje ^{226}Ra u vodi njena glavna manja je nemogućnost terenskog rada, dok se prednosti ostale dve merne tehnike ogledaju upravo u tome.

Krajanji cilj ovakvih ispitivanja jeste procena doza zračenja koje primi pojedinac i stanovništvo ingestijom radionuklida preko pijaće vode kao što je dano u radu (Todorović N. , et al., 2017a), što može uticati na povećanje ukupne doze zračenja na godišnjem nivou, pa čak pri dugoročnom konzumiranju takve vode dovesti i do karcinoma pojedinih organa. Zbog ovoga je veoma važno vršiti monitoring pijaće vode, po gotovu u sredinama gde je pijaća voda poreklom direktno iz litosfere, a pri tome jedini izvor vodosnabdevanja.

Literatura

"Sl. glasnik RS", b. 4. (2017). *Pravilnik o detektorima jonizujućeg zračenja, ("Sl. glasnik RS", br. 4/2017).*

"Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013. (2011, 2013). *Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013).*

"Sl. list SRJ", br. 42/98 i 44/99. (1998, 1999). Pravilnik o higijenskoj ispravnosti vode za piće, ("Sl. list SRJ", br. 42/98 i 44/99).

„Sl. glasnik RS“ br. 36/2009 i 93/2012. (2009, 2012). Zakon o zaštiti od ionizujućeg zračenja i nuklearnoj sigurnosti.

913.0, EPA Method. (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 Nevada 89119.*

ASTM D 7283–06,. (2009). Standard Test Method for Alpha– And Beta– Activity in Water By Liquid Scintillation Counting, 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428–2959, United States.

BEIR IV. (1988). Health risks of radon and other internally deposited alpha-emitters, NCP Washington, D.C.

Bikit, I., Slivka, J., Mrđa, D., Žikić-Todorović, N., Ćurčić, S., Varga, E., . . . Čonkić, L. (2003). *Simple Method for depleted uranium determination. Jpn. J. Appl. Phys 2003;42:5269-5273.*

Bikit, I., Slivka, J., Vesović, M., Krmar, M., Todorović, N., Mrđa, D., . . . Bikit, K. (2012). Izveštaj o realizaciji projekta-Praćenje radioaktivnosti zemljišta na teritoriji Grada Novog Sada tokom 2012. godine. http://www.environovisad.org.rs/images/monitoringrazno/izvestaji2012/radioaktivnost_2012.pdf.

BIPM. (2004). *Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 2 – A = 151 to 242), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France.*

BIPM. (2006). *Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 3 – A = 3 to 244), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France.*

BIPM. (2008). *Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 4 – A = 133 to 252), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France.*

BIPM. (2010). *Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 5 – A = 22 to 244)*, Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France.

BIPM. (2011). *Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 6 – A = 22 to 242)*, Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France.

BIPM. (2013). *Monographie BIPM-5, Table Radionuclides, (Vol. 7 – A = 14 to 245)*, Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France.

Burcham, W. (1974). *Nuklearna fizika-uvod sa fizikom čestica*. Beograd: Naučna knjiga.

Çakal, G. Ö., Güven, R. y., & Yücel, H. (2015). *An application of LSC method for the measurement of gross alpha and beta activities in spiked water and drinking water samples*, NUKLEONIKA 2015;60(3):637-642.

Currie, L.A. (1968). *Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry*. Anal. Chem. 40, 586-593.

Čonkić, L. (1997). *Uvod u zaštitu životne sredine-skripta*. Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet.

Damnjanović, B. (1962). *Principi zaštite od ionizujućeg zračenja*. Beograd: Savezna komisija za nuklearnu energiju.

Debertin, K., & Helmer, R. (1988). Gamma and X-ray spectrometry with semiconductor detectors, Elsevier Science Publishers New York.

Dragišić, V. (1997). *Opšta hidrogeologija*. Beograd: Univerzitet u Beogradu, Rudarsko-geološki fakultet.

Dželalija, M. (2011). *Ionizirajuće zračenje u biosferi*. Kemijsko-tehnološki fakultet, Sveučilište u Splitu.

EC. (1998). European Commission (EC). *European Drinking Water Directive 98/83/EC of 3 November 1998 on the quality of water intended for human consumption*. Official Journal L 330; 1998.

European Council. (2014). *Council Directive 2013/59/EURATOM of 5 December 2013, Official Journal of the European Union, L 13, pp. 1-73*.

Forkapić, S. (2013). Istraživanje gasovitih radioaktivnih produkata uranijuma i torijuma-doktorska disertacija. Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet.

Franić, Z., & Franić, Z. (2010). Radioekologija kao čimbenik sigurnosti na Mediteranu, pregledni rad SIGURNOST 52 (4) 335 - 344 (2010).

Guogang Jia, Jing Jia,. (2012). *Guogang Jia, Jing Jia, Determination of radium isotopes in environmental samples by gamma spectrometry, liquid scintillation counting and alpha*

spectrometry: a review of analytical methodology, *Journal of Environmental Radioactivity* 106 (2012) 98-119.

Hamzah, Z., Saat, A., & Kassim, M. (2011). Determination of Radon Activity Concentration in Water Using Gamma Spectrometry and Liquid Scintillation Counter Techniques, 2011 3rd International Symposium & Exhibition in Sustainable Energy & Environment, 1-3 June 2011, Melaka, Malaysia.

Hoaga, J. B., & Korff, S. (1962). *Elektronska i nuklearna fizika*. Beograd: Naučna knjiga.

IAEA. (1996). *International Atomic Energy Agency (IAEA). International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and the Safety of Radiation Sources. Safety Report Series, No. 115, Vienna; 1996.*

ICRP. (1975). Publication 23: Reference Man: AnatomicPhysiological and Metabolic Characteristics, International Commission on Radiological Protection.

ICRP. (1977). Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 26, Annals of the ICRP, 1(3).

ICRP. (1983). *Radionucfide Transformations. Energy and Intensity of Emissions. ICRP Publication 38. Annals of the ICRP 11-13.*

ICRP. (1990). Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 60, Annals of the ICRP, 21(1-3).

ICRP. (1994). *ICRP Publication 65: Protection Against Radon-222 at Home and at Work, Elsevier, Oxford, United Kingdom, ISBN: 0080424759.*

Kahn, B., R. R., & Cantrell, J. (1990). Analysis of 228Ra and 226Ra in public water supplies by a γ -ray spectrometer. *Health Phys.* 59 (1), 125-131.

Kappke, J., Paschuk, S. A., Rocha, Z., Corrêa, J. N., Denyak, V., Santos, T. O., & Reque, M. (2011). RADIUM ACTIVITY MEASUREMENTS IN BOTTLED MINERAL. *International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011, Belo Horizonte, MG, Brazil, October 24-28, 2011, ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR - ABEN.*

Kim, H., Jung, Y., Lee, W., Choi, G.-S., Chung, K. H., & Kang, M. J. (2016). Comparison of the Quantulus 1220 and 300SL Liquid Scintillation Counters for the Analysis of 222Rn in Groundwater, *Journal of Radiation Protection and Research* 2016;41(4):395-401.

Knoll, G. F. (1979). *Radiation detection and measurement*, John Wiley and Sons USA.

Köhlera, M., Preußeb, W., Gleisberga, B., Schäfera, I., Heinrichb, T., & Knobusb, B. (2002). Comparison of methods for the analysis of 226Ra in water samples, *Applied Radiation and Isotopes* 56, Pages 387–392.

Konjević, S., Vukotić, M., & Radovanović, R. (1979). *Radijum 226 u pijaćim vodama u Baranji, 10. Simpozijum Jugoslovenskog društva za zaštitu od zračenja, 29.05-10.06.1979., Aranđelovac.*

Kovačević, O. (1957). *Radioizoropi*. Beograd: Izdavačko preduzeće rad.

Krmar, M. (2013). *Uvod u nuklearnu fiziku*. Novi Sad: Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet.

L'Annunziata, M. F. (1998). *HANDBOOK OF RADIOACTIVITY ANALYSIS*, ACADEMIC PRESS San Diego London Boston New York Sydney Tokyo Toronto.

Lazarev, S. (2014). *Fizičke štetnosti u životnoj sredini*. Šabac: Visoka tehnološka škola Šabac.

Leo, W. R. (1994). *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments_A How-to Approach*-Springer.

Lowry, J. D. (1991). *Mearuring low radon levels in drinking water supplies*. J. Amer. Water Works Assoc.

Majer, R. (1965). *Uvod u nuklearnu tehniku*. Beograd: Izdavačko preduzeće Građevinska knjiga.

Manual, RAD7. (2017). RAD7 RADON DETECTOR User Manual, DURRIDGE radon instrumentation, Revision 7.4.2 2017 DURRIDGE Company.

Marinkov, L. (2010). *Osnovi nuklaerne fizike*. Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet.

Milojević, A., Urošević, V., & Kurepa, M. (1961). *Šta nam nude izotopi*. Beograd: Savezna komisija za nuklearnu energiju.

Moreno, H., Vioque, I., Manjon, G., & Garcia-TENORIO:, R. (1999). An easy method for Ra-226 determination in river waters by Liquid-scintillation counting. *Czechoslovak Journal of Physics Vol. 49(1999), Suppl.S1*, 467-472.

Mrđa, D., & Bikit, I. (2016). *Osnove fizike čestica i nuklearne fizike*. Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet.

Nikčević, M., & Andelić, T. (2011). radioaktivnost i ionizujuća zračenja detekcija, dozimetrija i zaštita od ionizujućih zračenja. Podgorica: OSCE.

Nikolić, J. D. (2015). Primena analitičkog eksperimentalnog, poluempijskog i Monte Karlo metoda za kalibraciju efikasnosti HPGe detektora u gama spektrometriji uzorka iz životne sredine, doktorska disertacija. Beograd: Fizički fakultet.

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

Passo, C. J., & Cook, G. T. (1994). *Handbook of Environmental Liquid Scintillation Spectrometry*. Meriden, U.S.A.: Packard instrument Company, 800Research Parkway.

Pavićević, D. S., & Matić, G. (2011). *Molekularna biologija I*. Beograd: NNK internacional.

QUANTULUSTM . (2002). QUANTULUSTM Measuring Extremely Low Levels of Environmental Alpha and Beta Radiation https://www.perkinelmer.com.cn/CMSResources/Images/46-73235BRO_Quantulus.pdf.

Rajković, M. B., Stojanović, M. D., Lačnjevac, Č. M., Tošković, D. V., & Stanojević, D. D. (2008).), *Određivanje tragova radioaktivnih supstanci u vodi za piće, ZAŠTITA MATERIJALA 49* (2008) broj 4, *UDC:628.161.2:546.79=861*.

Rogers, V.C. (1970). *Detection limits for gamma-ray spectral analysis. Anal. Chem.* 42, 807-808.

Salonen, L. (2006). Alpha/Beta Liquid Scintillation Spectrometry in Surveying Finnish Groundwater Samples, *Radiochemistry*, 48(6): 606–612.

Shapiro, J. (2002). *Radiation protection*, Harvard University press, Cambridge, Massachusetts, and London, England.

Slivka, J., Bikit, I., Vesović, M., & Čonkić, L. (2000). *Gama spektrometija, specijalne metode i primene*. Novi Sad: Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet.

Stojković, I., Tenjović, B., Nikolov, J., & Nataša Todorović. (2017). Possibilities and limitations of color quench correction methods for gross alpha/beta measurements, *Applied Radiation and Isotopes* 122 (2017) 164–173.

Stojković, I., Tenjović, B., Nikolov, J., Vesović, M., Mrđa, D., & Todorović, N. (2015). Improvement of measuring methods and instrumentation concerning 222Rn determination in drinking Waters-RAD7 and LSC technique comparison, *Applied Radiation and Isotopes* 98 (2015) 117-124.

Stojković, I., Todorović, n., Nikolov, J., & Tenjović, B. (2016). *PSA discriminator influence on 222Rn efficiency detection in waters by liquid scintillation counting*, *Applied Radiation and Isotopes* 112 (2016) 80–88.

Stojković, Ivana. (2015). *Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama-doktorska disertacija*. Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet.

Stojković, Ivana; Tenjović, Branislava; Nikolov, Jovana; Todorović, Nataša. (2015). *Radionuclide, scintillation cocktail and chemical/color quench influence on discriminator setting in gross alpha/ beta measurements by LSC*. *J. Environ. Radioact.* 144, 41–46.

Strom, D.J., Stansbury, P.S. (1992). *Minimum detectable activity when background is counted longer than the sample*. *Health Physics* 63, 360-361.

- Sturchio, N.C. (1990). *Radium isotopes, alkaline earth diagenesis, and age determination of travertine from Mammoth Hot Springs, Wyoming, USA.* Appl. Geochem. 5 (5-6), 631-640.
- Taka, L., Pejanović, S., & Živković, N. (2009). *Monitoring zdravstvene ispravnosti vode za piće, sintezni rad, UDK: 551.482.213/214.*
- Terzić, M., & Šiljegović, M. (2013). *Fizika okoline-odabrana poglavlja.* Novi Sad: Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet.
- Todorović, N. (2009). *Dozimetrija i zaštita od jonizujućeg zračenja-skripta.* Novi Sad: Prirodno-matematički fakultet.
- Todorović, N., Forkapić, S., Bikit, I., Mrđa, D., Vesković, M., & Todorović, S. (2011).), *Monitoring for exposures to TENORM Sources in Vojvodina region.* Radiat Prot Dosim 144(1-4):655–658.
- Todorović, N., Jakonić, I., Niklov, J., Hansman, J., & Vesković, M. (2014). Establishment of a method for 222Rn determination in water by low-level liquid scintillation counter, Radiation Protection, Dositemty (2014), pp. 1-5. doi:10.1093/rpd/ncu240.
- Todorović, N., Nikolov, J., Bjelović, S., Lučić, S., Stojković, I., Vraničar, A., & Ignjić, T. (2017a). Radionuclides in drinking water and risk assessment. *Zbornik radova 11. simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja (HDZZ)*, 283-288.
- Todorović, N., Nikolov, J., Forkapić, S., Bikit, I., Mrđa, D., Krmar, M., & Vesković, M. (2012). Public exposure to radon in drinking water in SERBIA, Applied Radiation and Isotopes 70, pages 543–549.
- Todorović, N., Nikolov, J., Krmar, M., Mrđa, D., Todorović, S., & Kuzmanović, P. (2017). ASSESSMENT OF NATURAL RADIOACTIVITY LEVELS IN BUILDING MATERIALS AND RESIDUES IN SERBIA. *Zbornik radova 11. simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja (HDZZ)*, 295-300.
- Todorović, N., Stojković, I., Nikolov, J., & Pispak:, P. (2015). DIFFERENT TECHNIQUES FOR 222RN DETERMINATION IN DRINKING WATERS, XXVIII Simpozijum DZZSCG, Vršac, 30.9.-2.10.2015., Beograd.
- UNSCEAR. (2000). *UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly with Scientific Annexes: Sources and Effects of Ionizing Radiation,* United Nations, New York, USA, ISBN: 92-1-142238-8.
- UNSCEAR. (2010). *UNSCEAR 2008 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.
- WHO. (1993). (World Health Organization), Guidelines For Drinking Water Quality, Second ed., Vol. 1, Recommendations.

WHO. (2004). *WORLD HEALTH ORGANISATION (WHO). Guidelines for drinking water quality, Third Edition, Volume 1*, World Health Organization. Geneva.

Živanović, M. Z. (2016). *Optimizacija merenja koncentracije radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera - doktorska disertacija*. Beograd: Univerzitet u Beogradu-fakultet za fizičku hemiju.

Kratka biografija autora



Roden je 30.07.1993. godine u Šapcu (Republika Srbija). Završio je osnovnu školu Laza K. Lazarević u Šapcu 2008. godine kao odličan učenik. Po završetku osnovne škole upisuje Šabačku gimnaziju, prirodno-matematički smer koji završava 2012. godine. Iste godine upisuje osnovne studije na Prirodno-matematičkom fakultetu Univerziteta u Novom Sadu na Departmanu za fiziku, smer Diplomirani profesor fizike. Novembra meseca 2014. godine postaje član Srpskog privrednog društva Fondacije „Privrednik“ - *stipendista, pitomac dvadeset prve generacije (2014/15.)*. Dobitnik je stipendije Ministarstva prosvete Republike Srbije četiri godine zaredom. Marta 2015. dobija i stipendiju za nadarene studente, koje se odriče u korist prethodne dve. Februara 2016. biva nagrađen godišnjom stipendijom za najbolje studente Grada Šapca, na šta je naročito ponosan. Istu nagradu dobija i u 2017. godini. 29.08.2016. završava osnovne studije, mesec dana pre zvaničnog roka kao 3. po redu u generaciji, sa ostvarenih 270 ESPB od planiranih 240 ESPB. Položio je 7 dodatnih predmeta i time stekao 30 ESPB više. Po završenim osnovnim upisuje master studije Nuklearne fizike (školske 2016/2017.). Učesnik je naučno-stručnih konferencija i seminara. Učesnik je i 13. međunarodnog programa „*Masterclasses - Hands on Particle Physics*“ održanog u Novom Sadu marta 2017. Autor i koautor je nekoliko naučno-stručnih radova. Aprila 2017. biva unapređen u *Studenta savetnika gradonačelnika Šapca*.

UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Redni broj:

RBR

Identifikacioni broj:

IBR

Tip dokumentacije:

TD

Monografska dokumentacija

Tip zapisa:

TZ

Tekstualni štampani materijal

Vrsta rada:

VR

Master rad

Autor:

AU

Predrag Kuzmanović

Mentor:

MN

prof. dr Nataša Todorović

Naslov rada:

NR

Poređenje metoda za ispitivanje ^{226}Ra u vodi

Jezik publikacije:

JP

Srpski (latinica)

Jezik izvoda:

JI

Srpski/Engleski

Zemlja publikovanja:

ZP

Republika Srbija

Uže geografsko područje:

UGP

AP Vojvodina

Godina:

GO

2017.

Izdavač:

IZ

Autorski reprint

Mesto i adresa:

MA

Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

Fizički opis rada:

5 poglavlja/111 strana/47 slika, grafikona/21 tabela/ 86 referenci

FO

Naučna oblast: Fizika
NO

Naučna disciplina: Nuklearna fizika
ND

Predmetna odrednica/ ključne reči: Radijum 226, radioaktivna ravnoteža, gama spektrometrija, alfa spektrometrija, RAD7, tečni scintilacioni brojač, Quantulus 1220, MDA.

UDK

Čuva se: Biblioteka Departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu
ČU

Važna napomena: nema
VN

Izvod: U radu je prikazano poređenje različitih metoda i tehnika za određivanje ^{226}Ra u vodi: tečna scintilaciona spektrometrija (LSC), alfa spektrometrija i gama spektrometrija. Tehnikom LSC određen je sadržaj ^{226}Ra u vodi korišćenjem sledećih metoda: standardne test metode ASTM D 7283-06 i EPA metode 913.0. Gama spektrometrijom je sadržaj ^{226}Ra određen direktnom metodom u Marineli geometriji. Alfa spektrometrom RAD7 određena je koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u vodi korišćenjem protokola Wat-250. Izvršeno je poređene rezultata dobijenih ovim metodama i dat je pregled prednosti i nedostataka svake metode i tehnike. Dobijene eksperimentalne vrednosti za sve metode su date sa odgovarajućom korekcijom.

Datum prihvatanja teme od NN veća: 04.04.2017.
DP

Datum odbrane: 23.06.2017.
DO

Članovi komisije:
KO

Predsednik: dr Jovana Nikolov, docent na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Član/mentor: dr Nataša Todorović, redovni profesor na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Član: dr Ivana Stojković, docent na Departmanu za opšte discipline u tehnički Fakulteta tehničkih nauka, Univerzitet u Novom Sadu.

UNIVERSITY OF NOVI SAD
FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS

KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number:

ANO

Identification number:

INO

Document type:

DT

Monograph publication

Type of record:

TR

Textual printed material

Content code:

CC

MSc paper

Author:

AU

Predrag Kuzmanović

Mentor/comentor:

MN

Nataša Todorović, PhD

Title:

TI

Comparison of methods for testing of ^{226}Ra in water

Language of text:

LT

Serbian (Latin)

Language of abstract:

LA

Serbian/English

Country of publication:

CP

Serbia

Locality of publication:

LP

Vojvodina

Publication year:

PY

2017

Publisher:

PU

Author's reprint

Publication place:

PP

Faculty of Science, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

Physical description:

5 chapters/111 pages/47 images, graphs/21 tables/86 references

PD

Scientific field: Physics
SF

Scientific discipline: Nuclear physics
SD

Subject/ Key words: Radium-226, secular radioactive equilibrium, gamma spectrometry, alpha spectrometry, RAD7, liquid scintillation counter, Quantulus 1220, MDA.
SKW

UDC

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

Note: none
N

Abstract: **AB**
The measurement of ^{226}Ra in natural water samples is important because it is one of the most hazardous elements with respect to internal radiation exposure. Therefore, in the monitoring studies it is desirable to have a precise and accurate technique for the determination of the activity concentration of this radionuclide. This paper presents a comparison of different techniques and methods for ^{226}Ra in water samples spiked with different concentrations of ^{226}Ra isotope: LSC (Liquid Scintillation Counting), alpha and gamma spectrometry. An overview of the advantages and disadvantages of each techniques are presented. ^{226}Ra in water samples were determined by gamma spectrometry using direct method (untreated water samples) and by RAD7 solid state detector. For ^{226}Ra determination by LSC two different methods were tested: ASTM D 7283-06 Standard test method for alpha and beta activity in water by liquid scintillation and EPA Method 913.0 for radon determination in drinking water.

Accepted by the Scientific Board: April 4, 2017
ASB

Defended on: June 23, 2017
DE

Thesis defend board:
DB

President: PhD Jovana Nikolov, assistant professor at the Department of Physics, Faculty of Science, University of Novi Sad.

Member/mentor: PhD Nataša Todorović, full professor at the Department of Physics, Faculty of Science, University of Novi Sad.

Member: PhD Ivana Stojković, assistant professor at the Department of Fundamentals Sciences Faculty of Technical Sciences, University of Novi Sad.