

УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ

ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ



ДЕПАРТМАН ЗА ФИЗИКУ

мр Селена Грујић

# БРЗЕ НЕДЕСТРУКТИВНЕ МЕТОДЕ ДЕТЕКЦИЈЕ ФИСИОНИХ ПРОДУКАТА ПРИ ДЕКОМИСИЈИ НУКЛЕАРНИХ РЕАКТОРА

-ДОКТОРСКА ДИСЕРТАЦИЈА-

Нови Сад, 2012.

Овим путем желим да се срдачно захвалим проф. др Уранији Козмидис-Лубурић на професионалном усмеравању, разумевању, помоћи и подршци током дугогодишње сарадње и на корисним сугестијама при изради докторске тезе. Такође, велику захвалност дугујем свом ментору проф. др Иштвану Бикиту на поверењу, помоћи, подршци, дивној сарадњи и драгоценим саветима. Посебно желим да се захвалим мр Миодрагу Милошевићу на теми, великој помоћи, времену које ми је посветио у току израде докторске дисертације, и на несебично пруженом знању и искуству, Јавном предузећу "Нуклеарни објекти Србије" које ми је омогућило да учествујем у једном од највећих и најкомпликованијих процеса препакивања и транспорта ислуженог нуклеарног горива у историји рада истраживачких нуклеарних реактора, а посебно ито ми је омогућило да урадим низ екперимената који чине ову дисертацију. Срдачно се захваљујем и колегама са Катедре за нуклеарну физику ПМФ-а на помоћи и сарадњи, ...хвала...и свим, мени драгим, особама које су ми на било који начин помогле и биле ми ослонац...

Селена Грујић

It is easier to break an atom than a prejudice

by Albert Einstein

# САДРЖАЈ

ПР	ЕДГС	<b>DBOP</b>			vi			
1	ИС	ГРАЖИ	ІВАЧКИ	РЕАКТОР "РА" У ВИНЧИ	1			
	1.1 Увод							
	1.2	Основ	вне каракт	геристике истраживачког реактора "РА"	2			
	1.3	Истор	ија озрач	ивања (неочекивани догађаји)	4			
		1.3.1	Контам	инација <sup>60</sup> Со (1963. година)	4			
		1.3.2	Оштеће	ње горивног елемента (1970. година)	5			
		1.3.3	Корозиј	а кошуљица горивних елемената (1979. година)	5			
	1.4	Моде	рнизација	а реактора	6			
	1.5	Деком	мисија ре	актора РА (2003- )	6			
2	ПР( НУ	ОИЗВЕ, КЛЕАР	ДЕНИ И РНОМ РЕ	ЗВОРИ ЗРАЧЕЊА НА Сактору "ра"	7			
	2.1	Увод			7			
		2.1.1	Фисион	и продукти	7			
		2.1.2	Актини	ди	11			
		2.1.3	Актива	циони продукти	11			
	2.2	Ислух	жено нукл	пеарно гориво на реактору "РА"				
		2.2.1	Основн	и подаци				
		2.2.2	Одлагал	иште ислуженог нуклеарног горива	13			
	2.3	Течни	и радиоак	тивни материјал				
	2.4	Чврст	г радиоак	гивни материјал	15			
3	MA	ТЕРИЈ	АЛИ, МІ	ЕТОДЕ И ТЕХНИКЕ ЗА				
	KAI	РАКТЕ	РИЗАЦИ	ІЈУ РЕАКТОРА "РА"				
	3.1	Избо	р детекто	pa	20			
		3.1.1	Основн	е особине детектора				
			3.1.1.1	Осетљивост				
			3.1.1.2	Одзив детектора				
			3.1.1.3	Енергетска резолуција				
			3.1.1.4	Функција одзива				
			3.1.1.5	Време одзива				
			3.1.1.6	Ефикасност детектора				
			3.1.1.7	Мртво време				
		3.1.2	Гасни де	етектори				

		3.1.2.1 Geiger Muller-ов бројач	24
		3.1.3 Сцинтилациони детектор	26
		3.1.4 Полупроводнички детектори	29
	3.2	Минимална детектабилна активност (МДА)	32
		3.2.1 Границе статистичких одлучивања	32
		3.2.2 Критична граница	32
		3.2.3 Граница детекције	34
	3.3	Методе за одређивање површинске контаминације	36
		3.3.1 Директна мерења површинских активности	37
		3.3.2 Индиректна мерења површинске активности	40
	3.4	Спектрометријске методе	42
		3.4.1 Гама спектрометрија	42
		3.4.2 Бета-спектрометрија	43
	3.5	Корелациони метод за мерење тешко-мерљивих радионулида	44
		3.5.1 Неутронски активирани корозионо/ерозиони продукти	45
		3.5.2 Фисиони продукти	45
		3.5.3 Актиниди	46
	3.6	Технике Монте Карло симулација	49
4	ОДР	РЕЂИВАЊЕ АКТИВНОСТИ <sup>90</sup> Sr У ВОДИ (ТЕШКОЈ/ОБИЧНОЈ) И	I
	BA3	ВДУХУ	51
	4.1	Особине <sup>90</sup> Sr	51
	4.2	Стандардне методе за одређивање активности <sup>90</sup> Sr	53
		4.2.1 Течни сцинтилациони бројач	54
		4.2.2 Бета сцинтилациони детектор- BetaScint <sup>тм</sup> Fiber-Optic Sensor	55
		4.2.3 Масена спектрометрија	55
		4.2.4 Компарација метода	57
	4.3	Геометријски модел полупроводничког Si детектора	58
	4.4	Калибрација PIPS детектора	61
	4.5	Припрема узорка	66
	4.6	Примена модела за узорке са чистим бета емитерима	67
	4.7	Резултати	68
		4.7.1 Одређивање активности <sup>90</sup> Sr у води	68
		4.7.2 Одређивање активности <sup>90</sup> Sr у ваздуху	71

5	ОДРЕЂИВАЊЕ УКУПНЕ ПОВРШИНСКЕ АКТИВНОСТИ НЕХОМОГЕНО КОНТАМИНИРАНИХ ПОВРШИНА								
	51	Увол 7							
	5.1	5.1.1	Цезиіум-137 ( <sup>137</sup> Ся)						
		5.1.2	Кобалт-60 ( <sup>60</sup> Со)						
	5.2	HP21	ОТ сонда за мерење површинске бета активности						
	5.3	Експе	ериментална и нумеричка калибрација ефикасности сонде НР	210T 82					
		5.3.1	Методологија одређивања ефикасности GM сонде за мерењ	e					
			површинских активности						
		5.3.2	Експериментална калибрација	83					
		5.3.3	Нумеричка калибрација ефикасности сонде НР210Т						
	5.4	Експе	ерименталн и нумеричка калибрација NaI (2 x 2") детектора	89					
		5.4.1	Покретни систем NaI (Tl) детектора са колиматором						
	5.5	Резул	тати						
		5.5.1	Плоча контаминирана <sup>60</sup> Со	101					
		5.5.2	Плоча контаминирана <sup>137</sup> Cs и <sup>90</sup> Sr	108					
6	ЗАК	ључа	лК	114					
	ΠPI	ИЛОГА	A (MCNP модел PD450-15-500AM PIPS детектора за стандар,	дни извор					
	зра	чења	Śr)						
	IIPI	AJIOI'I	<b>Б</b> (MCNP модел PIPS детектора за електроне конверзије 137n	n Ba y					
	води)								
	монитора AMS4) 124								
	<b>ПРИЛОГ</b> Д (Програм за LSI решавање активности радионуклида) 128								
	ΠΡΙ	ПРИЛОГ Е (МСПР модел НР210Т сонде за нумеричку калибрацију ефикасности							
	COF	нде за ст	тандардни извор зрачења <sup>90</sup> Sr/ <sup>90</sup> Y)						
	<b>ПРІ</b> кон	ИЛОГ ( нтамини	<b>Ф</b> (MCNP модел NaI (Tl) детектора са колиматором и нехомо иране плоче <sup>137</sup> Cs)	гено 149					
ЛИ	ТЕРА	ТУРА.							
_									
КЉ	УЧНА	. доку	ИЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА	170					

## ПРЕДГОВОР

Вештачки радиоактивни изотопи су радиоактивни изотопи који се не јављају у природним условима на Земљи. Најчешће се добијају бомбардовањем атомских језгара елементарним честицама или другим атомским језгрима и распадом или цепањем тако добијених језгара. Коришћење нуклеарне енергије широм света, пробе нуклеарних оружја, сагоревање угља, прерада и коришћење фосфорних ђубрива, рударска индустрија и стварање радиоактивног отпада доприносе повећању природне радиоактивности (Bikit et al., 2005; Pantelić et al., 2004; Pietrzak-Flis et al., 2001). Последице глобалног атмосферског загађивања радионуклидима и могуће опасности због њихове широке примене у свакодневном животу (од мединице преко енергетике до научних истраживања) потенцира чињеница да су неки од вештачких радионуклида најтоксичније супстанце које је човек произвео. Фисиони продукти <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr припадају групи радионуклида који настају у нуклеарним експлозијама, употребом нуклеарног оружја, и у току експлотације нуклеарних постројења и спадају у групу радионуклида јако опасних по здравље људи. Значајне количине <sup>90</sup>Sr настају фисијом <sup>235</sup>U и <sup>239</sup>Pu у нуклеарним реакторима тако да се овај радионуклид може наћи у ислуженом нуклеарном гориву и нуклеарном отпаду који се генерише приликом декомисије нуклеарних реактора. Велики део фисионих продуката доспева и у стратосферу где се транспортује на велике удаљености. Таложење радионуклида из стратосфере представља доминантан извор глобалне контаминације земљишта. <sup>90</sup>Sr представља посебно опасан загађивач у природи јер се не може идентификовати преносним инструментима као што су гама дозиметри. За разлику од алфа и гама зрачења које карактерише дискретан спектар, бета зрачење се емитује у континуалном спектру и у том смислу карактеризација ове врсте зрачења је компликована. Узевши у обзир чињеницу да бројни фисиони продукти који су примарно створени у нуклеарном реактору пролазе кроз низ бета и гама распада до стабилног нуклеуса потреба за овом врстом истраживања је велика.

Приликом руковања са радиоактивним материјалима или услед непланираних догађаја њиховог испуштања у животну средину може доћи до радиоактивне контаминације објеката, опреме, одеће и људске коже. Површинску контаминацију чине радиоактивне

материје које су непожељно депоноване или проливене на површине нерадиоактивних предмета, као што су алати, опрема, одећа, итд. У том смислу, деконтаминација чини суштински део програма за заштиту од зрачења, и служи да обезбеди чисте и безбедне радне услове и одговарајућу хигијену радника и објеката у којима се врши руковање радиоактивним материјалом. У супротном, радиоактивни предмети морају бити трајно одложени и на адекватан начин, при чему је карактеризација неизоставан корак.

Ова дисертација је настала у току процеса препакивиња ислуженог нуклеарног горива у оквиру пројекта декомисије истраживачког нуклеарног реактора "РА" у Винчи. Тема дисертације је развијање брзе, прецизне и недеструктивне методе за одређивање специфичне активности тешко-мерљивих фисионих продуката бета емитера у течном и чврстом узорку познате геометрије, као и у ваздуху. Стандардне методе које су широко заступљене подразумевају хемијску сепарацију и даљу детекцију ових радионуклида у процесу који је временски захтеван, скуп и генерише радиоактивни отпад.

Значајан део истраживања приказан у дисертацији базира се на развијању методологије за карактеризацију равних површина и објеката, контаминираних радионуклидима који су бета и гама емитери, и представља надоградњу конвенционалне методе предложене интернационалним стандардом. Методе су засноване на нумеричкој калибрацији детектора коришћењем Monte Carlo симулација које су драгоцене и незамењиве, поготово у случајевима када се методе експерименталне технике не могу применити. То се првенствено односи на бетаспектрометријске методе где се коришћењем Monte Carlo симулација може у укупном континуалном спектру нпр. утврдити удео сваког појединачног нуклида у узорку познатог атомског састава. У другој методи се коришћењем техника Monte Carlo може прецизније одредити тотална ефикасност детектора која утиче на тачност одређивања површинских активности, за разлику од стандардних метода које су ограничене избором калибрационих извора.

Циљ истраживања је да се искуства која су стечена у специфичним условима декомисије нуклеарног реактора, праћена развојем нове методологије за одређивање активности тешко мерљивих радионуклида и површинске активности у компликованим пољима зрачења, искористе за нова научна сазнања која ће се моћи даље користити у процесу декомисије нуклеарних реактора и других нуклеарних постројења, као и у реалним случајевима на терену и животној средини.

У првом поглављу дисертације дат је приказ историје рада истраживачког нуклеарног реактора "РА", са акцентом на непланиране догађаје који су довели до контаминације самог реакторског тела, површина и објеката који се налазе у склопу реакторског постројења. У другом поглављу су наведени постојећи произведени извори зрачења груписани у течни и чврст радиоактивни отпад (дата је карактеризација извора и активност), и кратак опис генерисаног ислуженог горива, количина и активност фисионих продуката пре процеса препакивања и опис складиштења. Треће поглавље даје преглед постојећих стандардних метода и техника за карактеризацију реакторског постројења са детаљнијим описом детектора који су коришћени у овом раду. Развијена методологија за одређивање специфичне активности радионуклида гама и чистих бета емитера је описана у поглављу четири као и преглед конвенционалних метода. Представљен је геометријски MCNP (Monte Carlo N-particle Transport Code) модел полупроводничког Si детектора са свим његовим карактеристикама, који је верификован и тестиран. Приказани су резултати одређивања специфичне активности <sup>90</sup>Sr у води и ваздуху. Поглавље пет се односи на методологију одређивања укупне површинске активности контаминираних површина бета и гама емитерима. Предствљени су MCNP модели Geiger Muller-овог и сцинтилационог NaI (Tl) детектора. На сложеном примеру, коришћењем Monte Carlo симулација, приказана је валидност методе која се на основу добијених резултата може сматрати поузданом и применљивом за карактеризацију равних површина у нуклеарним објектима и животној средини. На крају је дат закључак. Програми симулација су написани коришћењем MCNP-5 кода и дати су у прилогу. Резултати истраживања у току рада на тези приказани су у радовима [9], [42], [43] и [44].

Нови Сад, 11.08.2012.

мр Селена Грујић

# 1 ИСТРАЖИВАЧКИ РЕАКТОР "РА" У ВИНЧИ

# 1.1 Увод

Више од 60 година истраживачки реактори (ИР) представљају језгро напретка нуклеарне физике и нуклеарне технологије. Мултидисциплинарна истраживања на истраживачким реакторима су допринела развоју производње нуклеарне енергије и радиоизотопа, развој нуклеарне медицине, и разних других елементарних анализа. До данас је саграђено око 670 истраживачких реактора, од којих је 246 реактора у погону у 56 земаља широм света (IAEA, 2010). Међутим, пола од укупног броја оперативних истраживачких реактора је старо више од 40 година. Многи од њих су ремонтовани да би задовољили текуће стандарде и сигурносне критеријуме. Изазови који су повезани са експлотацијом истраживачких реактора, горивним циклусом и сигурносним аспектима, заједно са одржавањем како особља тако и објеката су актуелна тема у многим земљама.

Руска Федерација поседује највећи број оперативних истраживачких реактора (укључујући и критичне објекте) 49, следи САД (41), Кина (15), Јапан (15), Француска (12) и Немачка (11) (слика 1.1). Многе земље у развоју такође имају истраживачке реакторе, укључујући Алжир, Бангладеш, Колумбију, Гану, Јамајку, Либан, Мароко, Нигерију, Тајланд и Вијетнам. Остале чланице МААЕ (Међународна агенција за атомску енергију) које планирају да изграде прве истраживачке реакторе су Јордан, Азербејџан, Судан, итд. Многи реактори су изграђени током 1960. и 1970. године, а највећи број се достигао 1975. године када је у 55 земаља широм света 373 реактора било у погону, у поређењу са садашњим бројем од 246 (укључујући 12 ИР који су тренутно угашени). Више од 70% је старије 30 и више година, док је 50% старије од 40 година. До данас, 412 истраживачких реактора је угашено, размонтирано или је у процесу декомисије.



Слика 1.1 Преглед броја истраживачких реактора у свету (извор: IAEA, 2010).

Истраживачки реактори пружају широк опсег примене: у истраживањима неутронских снопова у циљу испитивања материјала, у не-деструктивним испитивањима, у неутронским активационим анализама, у продукцији радиоизотопа који се користе у медицини и индустрији, затим у неутронској радијацији тестирања материјала за фисионе и фузионе реакторе, за неутронске трансмутације допирања силицијума, и бојење драгих камења. Друга важна област у којима истраживачки реактори имају веома значајну улогу је едукација и тренинг оператора у свим гранама нуклеарних технологија, као и студената и научника у различитим областима науке.

Иако је велики број истраживачких реактора недовољно искоришћен или је у процесу декомисије, потреба за новим не јењава. Тренутно, пет нових истраживачких реактора је у изградњи, пет је било процесу изградње у последњих пет година, а 19 је завршено у току од 1994. до 2008. године (IAEA, 2010). Неки од ових реактора су дизајнирани да производе јаке неутронске флуксеве и имају вишенаменски карактер или су посвећени специјалним потребама у циљу развоја следећих генерација фисионих и будућих фузионих реактора.

# 1.2 Основне карактеристике истраживачког реактора "РА"

Истраживачки реактор "РА" у Винчи је био највећи нуклеарни истраживачки објекат у бившој Југославији и међу првим саграђеним реакторима у северо-источном делу Европе. Припадао је другој генарацији истраживачких реактора који су одиграли значајну улогу у развијању нуклеарне технологије и примени нуклеарне енергије и зрачења у различите научне, медицинске и индустријске сврхе. Реактор је купљен као кључни пројекат Института за теоријску и експерименталну физику (ITEP) из Москве који је 1955. године припадао бившем СССР-у (IAEA TC, 2003).

Реактор је пуштен у погон у децембру 1959. године, са горивним елементима од металног уранијума ниског обогаћења (2% <sup>235</sup>U), произведеним у фабрици "Elekhtrostal" у близини Москве. Од 1976. године су се користили и горивни елементи типа TVR-S од уранијум-диоксида високог обогаћења (80% <sup>235</sup>U) купљени од "Novosibirsk Chemical Concentration Plant" из Новосибирска у Русији. После неког времена рада са оба типа горивних елемената у мешовитом језгру, од 1980. год. па до затварања на истраживачком реактору "РА" користили су се само елементи високог обогаћења.

Нуклеарни реактор "РА" (слика 1.2) пројектован је као вишенаменски истраживачки реактор, са знатним експлотационим могућностима (у време кад је реактор стављен у погон максимални флукс термалних неутрона износио је око 5.5×10<sup>13</sup> neutrona/cm<sup>2</sup> s. Основне карактеристике реактора "РА" приказане су у табели 1.1.

PEAKTOP "A" 6.5/10 MW			
Нормална снага	6.5 MW		
Максимална снага	10 MW		
Средњи флукс неутрона	$2.9 \times 10^{13}$ neutrona /cm <sup>2</sup> s		
Нуклеарно гориво	Уран обогаћен са 2% урана 235		
Модератор	Тешка вода		
Рефлектор	Графит		
Хлађење	Принудна циркулација тешке воде		

Табела 1.1 Основне карактеристике истраживачког реактора "РА".

Реакторско постројење "РА" су чинили следећи основни делови и системи:

- централно тело (активна зона у алуминијумском реакторском суду, графитни рефлектор који се налази у спољашњем суду од нерђајућег челика и окружује унутрашњи суд, биолошки штит од воде и бетона)
- тешка вода као примарни систем за хлађење
- обична вода као секундарни систем за хлађење (техничка вода и графит као секундарни систем за хлађење)
- хелијумски систем са Не-атмосфером у горњем делу реакторског суда (служио је за превенцију деградације тешке воде и сакупљање експлозивних продуката хидролизе воде и могућих фисионих продуката)
- контролни систем технолошких параметара
- контролни систем снаге реактора
- систем за дозиметрију
- систем за транспорт горива
- помоћни системи (извор енергије, вентилациони системи, итд).



Слика 1.2 Нуклеарни реактор "РА".

Основна подручја коришћења реактора "РА" су била:

- активација радиоизотопа за потребе привреде, медицине и науке
- коришћење реактора за потребе нуклеарно-инжењерског програма
- коришћење реактора као извора зрачења (пре свега неутрона) за потребе основних и примењених истраживања у разним областима науке, као и потребе привреде и тадашње JHA (Југословенске народне армије).

Зграда истраживачког нуклеарног реактора "РА", заједно са одлагалиштем у коме је било складиштено озрачено нуклеарно гориво, првобитно је припадала Институту за нуклеарне науке "Винча", а данас је у оквиру Јавног предузећа "Нуклеарни објекти Србије". У непосредној близини постројења "РА" смештено је и постројење истраживачког нуклеарног реактора "РБ". Ова два постројења су функционално раздвојена, али су физички повезана контролисаним спајајућим ходником. Главна зграда реактора је на известан начин херметизована, остваривањем зона са потпритисцима, чиме се обезбеђује спречавање неконтролисаног испуштања радиоактивних материјала у околину.

# 1.3 Историја озрачивања (неочекивани догађаји)

Добар квалитет опреме и квалификовано особље је увелико допринело чињеници да се ниједан акцидент није десио у току 25 година рада реакторског постројења. Многи инциденти су довели до непланираних гашења, што и није изненађујуће за овакав тип постројења. Али свакако, број непланираних гашења реактора, условљених кваром опреме или људским фактором, је у просеку био једнак броју планираних гашења реактора.

Међутим, три главна инцидента, довела су до гашења реактора на дужи временски период и скренула пажњу на његове техничке карактеристике и недостатке.

## **1.3.1** Контаминација <sup>60</sup>Со (1963. година)

У току периода тестирања истраживачког реактора "РА" десила се значајна контаминација примарног расхладног кола <sup>60</sup>Со . Процес контаминације је започео још првим покретањем реактора, али тек 1963. године када је утврђен висок ниво контаминације компонената примарног кола, реактор је угашен. Дуго времена није било објашњења за присуство <sup>60</sup>Со у тешкој води. Али након главног ремонта пумпи расхладног система примарног кола, утврђено је да се контаминација десила услед ерозије лежишта ротора пумпи који су били изграђени од материјала који је садржавао значајне количине <sup>59</sup>Со (NTI, 2007). Разлог томе је што су ове пумпе првобитно биле дизајниране за употребу у хемијској индустрији, где садржај кобалта није био од значаја. Рад реактора је настављен 1964. године, после замене пумпи, на истој номиналној снази, али са смањеним протоком хладиоца у примарном колу (уместо рада са

3000 обртаја у минунти, пумпе су у даљем раду коришћене са смањеном брзином од 1500 обртаја у минунти, како би се смањиле вибрације компонената примарног кола за време рада).

## 1.3.2 Оштећење горивног елемента (1970. година)

Непосредно после редовног покретања реактора у септембру 1970. године, детектовано је значајно повећање радиоактивности гасова у хелијумском систему. После гашења реактора, мерења која су показала присуство радиоактивног изотопа <sup>137</sup>Cs, довела су до закључка да је дошло до оштећења горивног елемента у реакторском каналу. Након детекције гасовитих фисионих продуката у активној зони реактора, утврђен је реакторски канал у којем се налази оштећени горивни елемент и исти је одложен у један од базена одлагалишта озраченог нуклеарног горива у згради реактора "РА". Од тог инцидента, примарни расхладни систем реактора је контаминиран фисионим фрагментима. Такође, у току процеса препакивања, приликом транспорта озраченог горива из језгра до одлагалишта десила се и мања контаминција воде у базену.

## 1.3.3 Корозија кошуљица горивних елемената (1979. година)

Априла 1979. године, при планираној замени горива, установљено је да се на кошуљицама горивних елемената налазе велике наслаге корозионих продуката, што је у великом броју случајева онемогућило вађење горивних елемената из реакторских канала. Визуелна инспекција одређеног броја канала, показала је да талози постоје на обе врсте горивних елемената; да су више изражени код оних горивних елемената који су дуже боравили у језгру реактора, као и код канала који су се налазили у периферној области језгра, где је проток хладиоца био мањи.

Рад реактора је био привремено обустављен, а сви реакторски канали са горивним елементима су извађени из језгра реактора. Након извршених испитивања и анализа (установљено је да није дошло до пробоја кошуљице нити једног горивног елемента), предузет је низ мера како би се обезбедио несметани рад реактора у наредном периоду (Milošević et al., 1981). Реактор је наставио са радом септембра 1981. године, при чему су у језгру били само горивни елементи од високообогаћеног уранијума. Снага реактора је била ограничена на 2MW, а у примарном колу хлађења је у раду коришћена само једна пумпа.

Упркос мерама које су биле предузете, при визуелној инспекцији реакторских канала децембра 1982. године, установљено је да је поново дошло до појаве корозионих талога на кошуљицама горивних елемената, мада у мањем обиму. Поново је привремено обустављен рад реактора, а комплетна шаржа горива је испражњена из језгра. Уведене су додатне мере у раду реактора и средином 1983. године, реактор је наставио са радом, такође на снази од 2 MW, али су у примарном колу хлађења биле укључене у рад две пумпе (Šotić et al., 1984). Редовном контролом, која је вршена сваког месеца до августа 1984. године, када је реактор престао са даљим радом, било је утврђено да талога на горивним елементима више није било, што је такође потврђено и при многим каснијим инспекцијама овог горива које је спровело одељење Safegurds-а из MAAE.

# 1.4 Модернизација реактора

Почетком осамдесетих, после евалуације тренутног стања реакторског система, донета је одлука да се систем реконструише и модернизује. Унутрашњи реакторски суд је истражен коришћењем ТВ камера и ултрасоничне опреме. Утврђено је да је у прилично добром стању, и упркос корозионим проблемима у реакторском језгру, постојала је могућност његовог коришћења следећих 15-20 година.

У циљу наставка сигурног и ефективног рада реактора, део његове опреме је требало заменити, део реконструисати, и инсталирати нове додатне системе. Ова модернизација реактора је почела са делимичном помоћи МААЕ, али се никад није завршила у потпуности. Забраном нуклеарног програма у бившој Југославији крајем 80-тих, и услед санкција под којим је била Југославија почетком 90-тих, даља реализација модернизације реактора је постала немогућа.

# 1.5 Декомисија реактора "РА" (2003- )

После 25 година успешне експлотације, привременог гашења 1984. године, Влада Републике Србије у јулу 2002. године доноси формалну одлуку о коначном гашењу нуклеарног реактора "РА". У исто време донета је одлука о транспорту нуклеарног горива у земљу порекла Русију као првог корака у декомисији нуклеарног реактора (IAEA TC, 2003).

# 2 ПРОИЗВЕДЕНИ ИЗВОРИ ЗРАЧЕЊА НА НУКЛЕАРНОМ РЕАКТОРУ "РА"

## 2.1 Увод

Радиоизотопи су нестабилни изотопи хемијских елемената чија језгра подлежу радиоактивном распаду. У природи постоји око 60 радионуклида (радиоактивних елемената), који се могу наћи у тлу, ваздуху, води, храни, али и у свим живим бићима. Према начину настанка радионуклиди се деле на:

- Радионуклиде одувек присутне на Земљи, у које спадају радиоактивни елементи:  $^{235}$ U,  $^{238}$ U,  $^{232}$ Th,  $^{226}$ Ra,  $^{222}$ Rn или  $^{40}$ K. Ови радионуклиди потичу још из времена формирања Земље, а карактерише их врло дуго време полуживота, и до милијарду година (изузетак је гас радон, чији је полуживот 3,8 дана). Радон  $^{222}$ Rn, који припада радиоактивном низу  $^{238}$ U, је један од најопаснијих изотопа радона у животној средини јер емитује алфа зраке велике јонизационе моћи, и доприноси чак са 55% природном радиоактивном зрачењу. С обзиром да је у гасовитом стању, излази из земљишта и стена које садрже уран (већином у траговима), а највише га има у стенама у рудницима уранијума. У затвореним просторијама концентрација радона може бити повећана и услед еманације радона из грађевинског материјала, а резултати истраживања су приказани у раду Bikit et al. (2011).
- Радионуклиде као последица деловања космичког зрачења. Извор овог зрачења (коме смо непрестано изложени) је углавном изван нашег Сунчевог система (док један део долази и од Сунца), а састоји се од разних облика зрачења: врло брзих тешких честица, па до високоенергијских фотона и миона. Оно у међудејству са атомима у горњим слојевима атмосфере производи радионуклиде, који су најчешће краћег времена полуживота, као што су нпр., <sup>14</sup>С, <sup>3</sup>H, <sup>7</sup>Be, итд. Космичко зрачење чини око 13% од укупног природног околног зрачења.
- *Радионуклиде као последица људске делатности.* Човек својим активностима, посебно развојем нуклеарних реактора и тестирањем нуклеарног оружја, створио је неке радиоактивне елементе, попут <sup>90</sup>Sr, <sup>129</sup>I, <sup>131</sup>I, <sup>137</sup>Cs, <sup>239</sup>Pu, итд.

Квантитет и активност радиоактивног материјала генерисаног на нуклеарном постројењу строго зависи од снаге реактора и укупне израчене енергије у току његовог рада. Нуклеарном фисијом настају *фисиони продукти, актиниди* и *активациони продукти* који су последица неутронске активације саставних делова реактора и околних материјала.

#### 2.1.1 Фисиони продукти

*Нуклеарни фисиони продукти* су атомски фрагменти који настају након фисије језгара атома са великим атомским бројем. Типичан пример је фисија језгра <sup>235</sup>U које бомбардовањем термалним неутронима формира изразито нестабилно језгро <sup>236</sup>U које се потом дели на два мања језгра, уз емисију неколико неутрона при чему се ослобођа

велика количина енергије у форми топлоте, гама зрачење и неутрина. Повремено се деси да се током фисије створе три језгра, од којих једно углавном буде хелијум (90%) или трицијум (7%)

$${}^{235}_{92}\text{U} + n \rightarrow {}^{236}_{92}\text{U} \rightarrow {}^{a}_{b}\text{X} + {}^{c}_{d}\text{Y} + k \cdot n + 195 \text{ MeV}$$
(2.1)

где је к број неутрона, a+c+k = 236 и b+d = 92.

С обзиром да језгра која су богата наутронима практично лакше подлежу фисији (неутрони чине 61% нуклеона у  $^{235}$ U), иницијални фисиони продукти су скоро увек богатији неутронима него стабилна језгра исте масе. Због тога они могу бити нестабилни и углавном подлежу бета распаду до стабилног језгра, претварајући неутрон у протон при свакој бета емисији (фисиони продукти не емитују алфа честицу).

Само неколицина неутронима-богатих и кратко-живећих фисионих продуката се прво распада емитовањем неутрона. То су извори успорених неутрона који играју веома важну улогу у контроли нуклеарних реактора. Поред <sup>235</sup>U постоје и други изотопи који имају одговарајући ефективан пресек за термалне неутроне као што су <sup>233</sup>U, <sup>239</sup>Pu i <sup>241</sup>Pu.

Бројни фисиони продукти који су примарно створени у нуклеарном реактору имају кратко време полураспада и већина њих се коначно распада до стабилног нуклеуса пролазећи кроз серију распада (слика 2.1). Први бета распади су брзи, и могу ослободити бета честицу или гама зрачења високе енергије. Међутим, како се фисиони продукти приближавају стабилном нуклеарном стању, последњи распади се могу десити са дугим временима полу-распада при којима се ослобађају ниже енергије.



Слика 2.1 Серија радиоактивних распада фисионих продуката (извор: Lederer et al., 1967; Jammet et al., 1982).

Изузетак у овом правилу, са релативно дугим полу-животом и високом енергијом распада су  ${}^{90}$ Sr,  ${}^{137}$ Cs и  ${}^{126}$ Sn ( ${}^{126}$ Sn иако има високу енергију гама зрачења, дуго време полу-распада утиче на малу брзину ослобођене енергије, и је принос овог нуклида по фисији мали).

Услед распадања фисионих продуката, гориво реактора наставља да емитује топлоту и након што се заустави реакција фисије, с обзиром да је топлота крајњи облик у који се сва енергија природно претвара. Услед тога неопходно је обезбедити хлађење како реактора након његовог гашења, тако и ислуженог нуклеарног горива у процесу складиштења.

## Принос

По свакој фисији одређеног атома могу да настану различите врсте фисионих продуката. Међутим, иако сам процес фисије није предвидљив, фисиони продукти се могу статистички предвидети. Износ било којег појединачног изотопа произведеног по једној фисији се зове *принос*, и типично се изражава у процентима (%) по фисији атома.



Слика 2.2 Вероватноћа формирања фисионих продуката након бомбардовања <sup>235</sup>U, <sup>233</sup>U и <sup>239</sup>Pu термалним неутронима.

Док се под фисионим продуктима подразумева сваки елеменат од цинка преко лантанида, већина фисионих продуката се јавља у два пика (слика 2.2). Први пик се налази између (изражено у атомским бројевима) стронцијума и рутенијума, док се други јавља око телура до неодимијума. Тачан принос, у неку руку зависи од атома који подлеже фисији, и такође од енергије иницијалног неутрона. У суштини, уколико је виша енергија стања које подлеже нуклеарној фисији, већа је вероватноћа да ће фисиони продукти бити сличне масе. Отуда, како се енергија неутрона повећава и/или енергија фисионог атома повећава, долина између врхова постаје плића. Принос се обично изражава у односу на број фисионих језгара, а не у односу на број језгара фисионих продуката. Ређе се изражава као проценат свих фисионих продуката (сума до 100%).

#### Краткоживећи фисиони продукти

Радиоактивност мешавине фисионих продуката, непосредно после процеса фисије, углавном потиче од краткоживећих изотопа као што су  $^{131}$ I и  $^{140}$ Ba, после неколико месеци  $^{141}$ Ce,  $^{95}$ Zr/ $^{95}$ Nb и  $^{89}$ Sr имају највећи удео, док после две или три године највећи део потиче од  $^{144}$ Ce/ $^{144}$ Pr,  $^{106}$ Ru/ $^{106}$ Rh and  $^{147}$ Pm.

## Средње живећи фисиони продукти

После неколико година хлађења, већина радиоактивности потиче од <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr, који се производе са приносом од око 6%, и имају полуживот од око 30 година. Остали фисиони продукти са сличним временима полу-живота имају много мањи принос, мању енергију распада, и неколико њих (<sup>151</sup>Sm,<sup>155</sup>Eu,<sup>113m</sup>Cd) брзо нестане неутронским захватом док су још увек у реактору, тако да нису одговорни за већи допринос у радијацији. Што значи да, у периоду од неколико година до неколико стотина година после употребе, радијација ислуженог нуклеарног горива може бити моделована експоненцијалним распадом <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr. Они су познати као средње-живећи фисиони продукти.

<sup>85</sup>Кг је племенити гас и трећи најактивнији средње живећи фисиони продукт. Може да "побегне" у току текућих нуклеарних репроцесуирања, међутим, његова инертност утиче на то да се он не концентрише у окружењу, него се дифузијом униформно распореди у атмосфери у малим концентрацијама.

## Дугоживећи фисиони продукти

На временској скали изнад 10<sup>5</sup> година дугоживећи фисиони продукти, првенствено <sup>99</sup>Tc, представљају значајан удео преостале активности, заједно са дугоживећим актинидима као што је <sup>237</sup>Np и <sup>242</sup>Pu, ако нису до тада уништени.

Само седам фисионих продуката има дуг живот полу-распада који је много дужи од 30 година, и креће се у опсегу од 200 000 до 16 милиона година. Пола од њих имају релативно висок принос око 6%, док остали имају много мањи (табела 2.1).

Актиниди				Полу-живот [год]	Фисиони продукт			
<sup>244</sup> Cm	<sup>241</sup> Pu	<sup>250</sup> Cf	<sup>243</sup> Cm <sup>f</sup>	10-30	$^{137}$ Cs	<sup>90</sup> Sr	<sup>85</sup> Kr	
$^{232}$ U <sup>f</sup>		<sup>238</sup> Pu		69-90			<sup>151</sup> Sm n	c→
4n	$^{249}\mathrm{Cf}^\mathrm{f}$	$^{242}Am^{f}$		141-351				
	$^{241}$ Am		$^{251}$ Cf <sup>f</sup>	431-898	Her	ма фисион	них продун	ката
<sup>240</sup> Pu	<sup>229</sup> Th	<sup>246</sup> Cm	<sup>243</sup> Am	$5-7 \cdot 10^{3}$	ca i	юлу-живо	отом од 10	<sup>2</sup> до
	$^{245}$ Cm <sup>f</sup>	<sup>250</sup> Cm	<sup>239</sup> Pu <sup>f</sup>	$8-24 \cdot 10^{3}$		$2 \cdot 10^{-10}$	) <sup>5</sup> год.	
4n	$^{233}U^{f}$	<sup>230</sup> Th	<sup>231</sup> Pa	$32 - 160 \cdot 10^3$				
	4n+1	<sup>234</sup> U		$211-290\cdot10^3$	<sup>99</sup> Tc		<sup>126</sup> Sn	<sup>79</sup> Se
<sup>248</sup> Cm		<sup>242</sup> Pu	4n+3	$340 - 373 \cdot 10^3$	Дуго-:	кивећи фі	исиони пре	одукти
	<sup>237</sup> Np			$1 - 2 \cdot 10^6$	$^{93}$ Zr	<sup>135</sup> Cs	nc→	
<sup>236</sup> U		4n+2	$^{247}$ Cm <sup>f</sup>	$6 - 23 \cdot 10^6$		$^{107}$ Pd	$^{129}I$	
<sup>244</sup> Pu	4n+1			$80.10^{6}$	>7%	>5%	>1%	> 0.1%
<sup>232</sup> Th		<sup>238</sup> U	$^{235}U^{f}$	$0.7 - 12 \cdot 10^6$	При	нос фисис	оних проду	уката

Табела 2.1 Радиоактивност продуката фисије кроз време.

#### 2.1.2 Актиниди

Актиниди су језгра елемената нуклеарног горива који су захватили неутроне али нису подлегли фисији. Након што се концентрација <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr у ислуженом нуклеарном гориву распадом смањује у току времена, главни део радиоактивности потиче од актинида, посебно <sup>238,239,240</sup>Pu, <sup>241</sup>Am, <sup>243</sup>Am, <sup>242,245</sup>Cm. Они могу бити третирани нуклеарним репроцесингом и подврнути фисији, чиме се нуди могућност смањења радиоактивности отпада на временској скали од 10<sup>3</sup> до 10<sup>5</sup> година.

#### 2.1.3 Активациони продукти

Неутронска активација је процес у којем неутронско зрачење проузрокује радиоактивност у материјалима, и јавља се када атомско језгро захвати слободан неутрон, и на тај начин постаје теже и у побуђеном стању. Побуђено језгро обично се распада истог момента емитујући честице, неутроне, протоне или алфа честице. Захват неутрона углавном је праћен формирањем нестабилног активационог продукта.

Такво радиоактивно језгро може имати полу-живот распада од делића секунде до неколико година. Формирање <sup>60</sup>Со је пример такве врсте нуклеарне реакције у нуклеарном реактору.

$$^{59}_{27}$$
Co + n  $\rightarrow ^{60}_{27}$ Co

Неутронско струјање може резултирати у активацији реакторских компонентни које нису у непосрединој близини језгра. То се односи на зидове базена за допуну горива, компоненте вентилационог система и гасне цеви у гасом хлађеним реакторима (слика 2.3).



Слика 2.3 Неутронска активација.

Недовољна информисаност у раним фазама декомисије комерцијалних нуклеарних реактора је била повезана са недостацима у процесу детаљне карактеризације неутронско активираног унутрашњег реакторског суда, циркуларног система и околних површина као што је биолошки штит. У скорије време, већа пажња се посвећује овом проблему и уложен је значајан труд да би се прикупили поуздани подаци о нивоу активационих продуката у угашеном постројењу. Неутронски активиране компоненте представљају, до сада, најзначајнији допринос у укупној радиоактивности радиоактивног инвентара, достижући активност од стотину и хиљаду TBq за комерцијалне реакторе који су више деценија били у погону (IAEA, 1998).

# 2.2 Ислужено нуклеарно гориво на реактору "РА"

Нуклеарно гориво је материјал који садржи атомска језгра неких тешких хемијских елемената којима се могу остварити нуклеарни процеси за ослобађање енергије. У најчећша нуклеарна горива убрајају се три фисиона материјала: уранијум-235 (<sup>235</sup>U), плутонијум-239 (<sup>239</sup>Pu) и уранијум-233 (<sup>233</sup>U), и само један од њих је нађен у природи више него у траговима.

#### 2.2.1 Основни подаци

У току експлоатације на истраживачком нуклеарном реактору "РА" коришћени су искључиво горивни елементи типа TVR-S (слика 2.4), произведени у бившем Совјетском Савезу. У периоду од пуштања реактора у рад, децембра 1959. године, па до 1979. године, коришћени су елементи од металног уранијума ниског обогаћења (2%<sup>235</sup>U), а од 1976. до 1984. године, када је ректор престао са радом, коришћени су елементи од уранијум-диоксида високог обогаћења (80%<sup>235</sup>U). Горивни слој елемената ниског обогаћења чинио је чист метални уранијум, док је у елементима високог обогаћења тај слој чинио уранијум диоксид у матрици алуминијума. Код оба типа горивних елемената, горивни слој је био обложен алуминијумском кошуљицом дебљине 1 mm, а количина уранијума се мало разликовала (7.25 g код нискообогаћеног горива и 7.7 g код високообогаћеног горива) (NTI, 2007). Све структурне компоненте горивног елемента типа TVR-S начињене су од легуре алуминијума SAV-1 (0.985 тежинске фракције алуминијума са веома малим садржајем нечистоћа које су добри абсорбери неутрона, нпр. бор или кадмијум) (Реšić et al., 2002). У табели 2.2 је приказан укупан број озрачених елемената и њихова локација пре транспорта.





Слика 2.4 Горивни елементи типа TVR-S.

		Обогаћење		
Локација	Начин смештаја	2%	80%	
Одлагалиште	30 Al судова испуњених водом, сваки суд садржи цеви, свака цев садржи 5 или 6 ТВР-С	4929	-	
озраченог горива	249 контејнера испуњених водом. Сваки контејнер садржи Al реакторски канал са горивним елементима (макс 12 ТВР-С)	1726	894	
Језгро реактора	48 сувих Al реакторских канала. Сваки канал садржи по 10 ТВР-С	-	480	
Вруће ћелије реактора	Посуда напуњена водом	1	-	
Укупни број гор	6656	1374		
Укупно			)30	

Табела 2.2 Локација, начин смештаја и обогаћење ислуженог нуклеарног горива (Milošević, 2006).

Ислужено нуклеарно гориво се састојало од 2.5 тона металног уранијума и око 14 kg уранијум-диоксида (Milošević, 2005). Израчуната вредност тоталне активности озраченог нуклеарног горива, базирана на историји озрачивања скоро сваког горивог елемента непосредно пре почетка препакивања (новембар 2009) износила је око  $3.3 \cdot 10^3$ TBq, од тога 45% је потицала од активности  $^{137}$ Cs/ $^{137m}$ Ba, 45% од активности  $^{90}$ Sr/ $^{90}$ Y, док 10% активности је потицало од осталих 1700 радионуклида<sup>1</sup> (Milošević, 2011).

#### 2.2.2 Одлагалиште ислуженог нуклеарног горива

У згради реактора "РА", у посебној просторији која се налази у партеру, непосредно уз халу реактора, смештено је одлагалиште озраченог нуклеарног горива. Сво гориво, које се налазило у овој просторији, било је произведено радом овог истраживачког нуклеарног реактора (1960-1984. год) (Milošević, 2003). Само одлагалиште се састоји од пет базена, од којих је један предвиђен за суво одлагање (тзв. суви базен, у којем се налазе разне активиране и контаминиране компоненте опреме реактора), док су остали предвиђени за мокро одлагање, и у њима је било смештено озрачено нуклеарно гориво. Базени за мокро одлагање, који су међусобно одвојени, повезани су линијски транспортним каналом, који их својим другим крајем повезује са телом реактора (путем овог канала врши се пренос озрачног нуклеарног горива из тела реактора у базене) (слика 2.5). Базени за мокро одлагање, заједно са транспортним каналом, испуњени су обичном водом из водоводне мреже.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> На основу прорачуна са модерним кодовима као што су MCNP-5, SCALE-4.4а и ORIGEN-2.1.

Мокри део одлагалишта није поседевао никакав систем за одржавање потребног квалитета воде која се у њему налази. Такав систем није био ни пројектован, а није ни касније дограђен. То је временом довело до стварања велике количине талога, посебно по дну базена и транспортног канала, али и до корозије металних делова који нису били израђени од нерђајућег челика. У 1995. години, извршена је анализа узорака воде из базена и муља узетог са дна, која је показала да су хемијски параметри воде далеко од оних који би требало да буду у воденој средини у којој се налази алуминијум. Измерена активност воде кретала се у границама од 100 Bq/ml до 130 Bq/ml, док је активност муља била близу 20 kBq/g (Milošević, 2006).



Слика 2.5 Хоризонтални пресек одлагалишта озраченог нуклеарног горива, транспортног канала и дела реактора.

Складиштење 8030 горивних елемената типа TVR-S у води базена, резултирало је високим цурењем <sup>137</sup>Cs. Крајем 2011. године у води базена, после препакивања ислуженог нуклеарног горива, активност <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr је била 10 GBq и 0.8 GBq, респективно. Значајан део <sup>137</sup>Cs из воде је уклоњен коришћењем уређаја WCCS (Water Chemistry Control System). Тотална измерена активност <sup>137</sup>Cs у четири WCCS колоне је 0.9 TBq, док је процењена активност <sup>137</sup>Cs у муљу базена 0.1 TBq. Такође, активност 2 m<sup>3</sup> воде у челичним контејнерима коришћеним за смешатај горива, је 1 TBq <sup>137</sup>Cs (Milošević, 2011).

## 2.3 Течни радиоактивни материјал

Течни радиоактивни материјал на нуклеарном постројењу "РА" састоји се од течности одређене количине на локацијама приказаним у табели 2.3.

"РА.	
Локација	Количина [m <sup>3</sup> ]
Резервоар за течни отпад	340
Одлагалиште ислуженог горива	200
Реактор	35
Тешка вода	5.5
Укупно	580

Табела 2.3 Локација и количина течног радиоактивног отпада у објекту постројења

Тешка вода која је била у примарном расхладном колу и служила као модератор реактора "РА" може бити пречишћена и коришћена у друге сврхе, и не мора бити третирана као радиоактивни отпад. Тотална активност трицијума (<sup>3</sup>H) крајем 2011. године у резервоару тешке воде (5.5 m<sup>3</sup>) је била 170 TBq (Milošević, 2011).

## 2.4 Чврст радиоактивни материјал

Чврсти радиоактивни материјали могу да се сврстају у две категорије:

а) Материјали настали неутронском активацијом

Ови материјали су били озрачени неутронима и лоцирани су, у, или близу језгра реактора. Реакторско језгро је најактивиранији део реакторске структуре. Део реактора који је био изложен релативно ниским неутронским флуксевима је биолошки штит, обично сачињен од бетона и челика.

#### б) Контаминирани материјали

Ови материјали могу бити контаминирани активационим продуктима који су услед процеса корозије и ерозије доспели у расхладну течност и дисперзијом озраченог горива и фисионих продуката. Контаминација такође може да настане цурењем у примарном колу, процесуирањем и складиштењем радиоактивних ефлуената и отпада, у току процеса одржавања и поправке, у процесима пражњења језгра и других операција. Контаминација ваздуха може да допринесе депозицији радиоактивних супстанци на зидове, таванице и вентилационе системе. У општем случају нуклеарно гориво и расхладна течност се уклањају из реактора након гашења, пре било којег процеса декомисије. Међутим у неким случајевима, нарочито кад је реактор био под неким специфичним условима, као што је цурење горивних елемената у каналима језгра реактора, остаци ових материјала остану у реакторском систему, као у случају реактора "РА". У току рада реактора, један горивни елеменат је оштећен што је довело до дисперзије фисионих продуката изван реакторског језгра. Цурење ислуженог горива у алуминијумским бурићима и челичним контејнерима је довело до активности воде у базенима одлагалишта. Ширење <sup>60</sup>Со је допринело да су све структурне компоненте примарног кола хлађења реактора "РА" високо контаминиране. Груба процена активне количине структурних материјала и компонената самог реактора је приказана у табели 2.4

Врста материјала	Количина [m <sup>3</sup> ]
Армиран бетон	350
Песак	50
Графит	12
Укупно	412

Табела 2.4 Процена количине чврстог отпада на самом реактору "РА"(слика 2.6).



Слика 2.6. Вертикални пресек реакторског система РА.

Што се тиче индуковане активности у реактору, водени штит који се налази између бетона и графитног рефлектора допринео је ниској неутронској активацији у бетону (< 10 GBq). Са друге стране неутронски индукована активност у графитном рефлектору, реакторским судовима (од алуминијума и од нерђајучег челика) и песку је доста висока

(50 ТВq, 11 ТВq и 0.1 ТВq, респективно)<sup>2</sup>(табела 2.5). Такође, Wigner-ова енергија мора бити уклоњена из 1/3 графита где је неутонски флукс био већи од  $10^{19}$  cm<sup>-2</sup> (Milošević i Raičević, 2012).

Табела 2.5 Индукована активност на реактору "РА" и максималне концентрације радионуклида (Milošević i Raičević, 2012).

Делови реактора "РА"	Нуклиди	Активност [TBq]
Графитни рефлектор	Tricijum, <sup>14</sup> C, <sup>152</sup> Eu,	~ 172
Челична посуда	<sup>60</sup> Co, <sup>63</sup> Ni,	<i>≤</i> 52
Алуминијумске посуде и унутрашњи Аl део	<sup>60</sup> Co,	≤ 11
Бетонски штит	<sup>133</sup> Ba, <sup>60</sup> Co,	≤ 0.2

 $<sup>^{2}</sup>$  На основу прорачуна са модерним кодовима као што су MCNP-5, SCALE-4.4a и ORIGEN-2.1.

# **3** МАТЕРИЈАЛИ, МЕТОДЕ И ТЕХНИКЕ ЗА КАРАКТЕРИЗАЦИЈУ РЕАКТОРА "РА"

За нуклеарна постројења, декомисија представља финалну фазу у животном циклусу који имплементира избор локације, дизајнирање, конструкцију и експлотацију нуклеарног реактора. То је комплексан процес који укључује разноврсне активности, као што је деконтаминација, расклапање и рушење опреме и различитих структура, управљање генерисаним отпадом, и све аспекте заштите животне средине и људи. Крајњи циљ декомисије је трајна и неограничена употреба у друге сврхе места на којем је постојало нуклеарно постројење.

Стратегија декомисије нуклеарних реактора може да варира од случаја до случаја. Она може да подразумева како тренутно рушење објеката одмах по затварању тако и одложено, после одређеног периода времена. Зависи од следећих фактора (IAEA, 1998):

- националне политике
- сигурносних критеријума
- складиштења отпада
- људских и осталих ресурса
- материјалних средстава и финансирања
- технолошких захтева
- међузависност са осталим активностима.

Планирање и имплементација стратегије декомисије нуклеарних реактора захтева знање везано за процесе и нивое неутронске активације и контаминације у току рада и након затварања постројења. За реакторе који су били подвргути стандарним процесима експлотације, основна компонента радиоактивног инвентара су активациони продукти у конструкционим материјалима. Величина и ниво активационог процеса може бити процењена на бази теоријских прорачуна који се базирају на геометрији, саставу материјала и историје рада нуклеарног реактора. Мерења и узорковања треба да буду урађена на специфичним локацијама како би се осигурало репрезентативна екпериментална основа за даљу карактеризацију.

Контаминација површина и објеката у затвореним нуклеарним објектима је резултат ослобођених радиоактивних елемената из горива, заједно са активационим продуктима корозије и ерозије који су настали у току погона или неких непланираних активности. Ови радиоактивни елементи су саставни део материјала који је третиран, одложен као нпр. гориво. Познавање инвентара радиоактивних материјала је веома важно у предвиђању нивоа радиоактивности и одабиру адекватних метода и процени времена за декомисију. У супротности са проценом активираних материјала, веома је тешко теоријски проценити количину и дистрибуцију заостале контаминације широм постројења. МААЕ је представила технику декомисије у свом програму у току 1970. године, и од 1980. год. је израђено преко двадесет публикација као што су: Safetu Series, Tehnical Reports и Tehnical Documents на тему декомисије, укључујући правно/регулаторне аспекте, техничке аспекте, планирање и сигурност процеса декомисије (IAEA, 1998).

Карактеризација је круцијални корак у поступку процеса декомисије и захтева логичан приступ у циљу добијања неопходних података за планирање програма декомисије. Свеобухватан програм карактеризације обухвата следеће кораке:

- преглед историјских чињеница
- имплементацију рачунских метода
- припрема аналитичког плана базираног на одговарајућем статистичком приступу
- извођење *in situ* мерења, узорковања и анализа
- преглед и евалуацију добијених података и
- поређење измерених и израчунатих података.

У процесима карактеризација један од основних корака је избор мерне методе и детектора који зависи од конкретног проблема. Рецимо, ако је потребно да се одреди активност по јединици површине како би се утврдило да ли је превазиђен дозвољен ниво контаминације, избор детектора зависи од МДА детектора. У овом поглављу биће описан принцип рада детектора који су коришћени у овом раду као и мерне методе на којима се базира развијена методологија.

# 3.2 Избор детектора

Избор детектора зависи од његових карактеристика, врсте зрачења и емитоване енергије извора, геометрије детектор-извор, поља зрачења и минималне детектабилне активности детектора. Изабрани детектор треба да има ефикасан одзив на радионуклиде од интереса, поготово у мешовитом пољу зрачења. За већину радионуклида површинска активност се може одредити директним мерењем, међутим неки, као што су <sup>3</sup>H, <sup>241</sup>Pu и <sup>63</sup>Ni се веома тешко директно мере (Burgess, 1998). На пример, трицијум има веома јаку тенденцију да буде апсорбован, чак и на глатким металним површинама, што утиче на поузданост мерења. Сваки детектор има различите вредности за МДА (више речи у следећем поглавњу) за исте радионуклиде и те вредности треба да буду мање од вредности clearance level-а.

За мерење укупне активности користе се детектори са високом ефикасношћу, пре свега пропорционални и сцинтилациони детектори, док се за сложенија мерења користе полупроводнички спектрометри који имају већу резолуцију.

Детектори који се користе за детекцију зрачења могу да се сврстају у једну од три основне категорије:

- гасни детектори
- сцинтилациони детектори
- полупроводнички детектори.

# 3.1.1 Основне особине детектора

#### 3.1.1.1 Осетљивост

Важна особина детектора је осетљивост, тј. способност детектора да произведе користан сигнал за дато зрачење и енергију. Ниједан детектор не може бити осетљив за сво зрачење и енергије. Детектори се праве наменски за дати тип зрачења и за дату област енергија.

Осетљивост детектора за дати тип зрачења одређене енергије зависи од неколико фактора:

- пресек за јонизујуће реакције у детектору
- детекторска маса
- инхерентни детекторски шум
- заштитни материјал који опкољава осетљиву запремину детектора.

Пресек и детекторска маса одређују вероватноћу да се енергија или део енергије упадног зрачења претвори у јонизацију унутар детектора. Јонизујући сигнал мора бити

јачи од средњег шума детектора како би био од користи. Материјал који опкољава детектор одређује доњу границу енергије која може бити детектована (Leo, 1994).

## 3.1.1.2 Одзив детектора

Поред детекције присутног зрачења, већина детектора је у стању да обезбеди неке информације о енергији тог зрачења. Количина јонизације је пропорционална губитку енергије зрачења унутар осетљиве запремине детектора. Ако се енергија упадног зрачења у потпуности предала за јонизацију унутар детектора, онда је мера количине јонизације у ствари информација о енергији упадног зрачења.

Уопште излазни сигнал електричних детектора има форму струјног сигнала. Количина јонизације се тада огледа у створеној количини наелектрисања. Веза између енергије зрачења и висине излазног сигнала представља у ствари одзив детектора. Идеално би било да је ова веза линеарна. За многе детекторе одзив детектора јесте линеаран или бар апроксимативно у одређеном интервалу енергија (Leo, 1994).

## 3.1.1.3 Енергетска резолуција

За детекторе који су тако направљени да мере енергију упадног зрачења, најважнији фактор је енергетска резолуција. Енергетска резолуција детектора говори о томе колико детектор може разликовати две линије блиских енергија. Упоште, енергетска резолуција се може одредити слањем моноенергетског зрачења ка детектору, а затим се посматра добијени спектар. Идеалан случај би био да се добије оштра делта функција. У реалности ово никад није случај, добија се сложени врх са неком коначном ширином, обично Гаусовог облика. Ширина овог врха расте са флуктуацијама у јонизацијама и ексцитацијама.

Резолуција је обично дата у смислу тоталне ширине на половини висине врха (FWHMfull width at half maximum ). Енергије које се налазе ближе него што износи вредност FWHM се обично не разматрају. Ако ширину линије изразимо као  $\Delta E$ , онда је релативна резолуција на енергији E дата са:

$$R = \Delta E / E [\%] \tag{3.1}$$

Резолуција изражена формулом (3.1) је обично дата у процентима. Германијумски детектори имају резолуцију реда величине 0.1%. Уопште резолуција је функција енергије депоноване унутар осетљиве запремине детектора, која се побољшава са растом енергије. У ствари је пронађено да је средња енергија јонизације константан број, w, и зависи само од материјала. За депоновану енергију Е, средњи број јонизација је J=E/w. Како енергија расте, расте и број јонизација, а релативне флуктуације се смањују (Leo, 1994).

## 3.1.1.4 Функција одзива

За снимање енергетског спектра, важан фактор који треба размотрити је функција одзива детектора за тип детектованог зрачења. Функција одзива детектора се може дефинисати када детектор излажемо одређеном типу моноегретског зрачења. Идеално би било да се у спектру добије Гаусова крива.

У случају да се детектор излаже гама зрацима, облик криве можемо предвидети познавајући како електромагнетно зрачење интерагује са материјом од кога је израђен детектор. Да би енергија гама кванта била детектована, она мора произвести наелектрисане честице унутар осетљиве запремине детектора. Механизми који ово омогућују су фотоелектрични ефекат, Комптоново расејање и производња електронпозитрон пара. Фотоелектрони добијени од моноенергетског зрачења имају исте енергије, те доприносе Гаусовом облику криве у спектру. Комптонови електрони имају континуалну расподелу, као такви представљају сметњу у снимљеном спектру. Пар ефекат такође неповољно утиче на добијену слику о моноенергетском зрачењу усмереном ка детектору.

Ако детектор користимо за мерење спектра гама зрачења, дистрибуција броја регистрованих гама кваната у фунцији енергије биће дата са:

$$N(E) = \int S(E') R(E, E') dE'$$
(3.2)

где је R(E,E') функција одзива детектора на упадној енергији E', а S(E') је енергетски спектар гама зрачења. Да би познавали спектар гама зрачења из дистрибуције пикова неопходно је познавати функцију одзива детектора R(E,E') (Leo, 1994).

## 3.1.1.5 Време одзива

Веома важна карактеристика детектора је време одзива. Ово је време потребно да се генерише сигнал након пристизања зрачења у детектор. То је веома битно за временску карактеристику детектора. Пожељно је да ово време буде што је могуће краће. Време трајања сигнала је такође важна карактеристика. У току овог периода, други догађај не може бити регистрован јер детектор није осетљив на зрачење, или ће се други догађај сумирати са првим. Ако се други догађај сумира са првим онда сигнал мења облик. Овакве сигнале је могуће одбацити одговарајућим колом. Ефекат се зове насумично сумирање. Ово доприноси такозваном мртвом времену бројача и ограничава да стваран број упадних фотона буде регистрован (Leo, 1994).

## 3.1.1.6 Ефикасност детектора

Ефикасност се у експерименталној физици, уопште узев, дефинише као однос реакције неког инструмента и вредности физичке величине која се мери. У спектрометрији фотона та физичка величина је брзина емисије фотона дате енергије, а мерена величина је брзина бројања. У гама спектрометрији уобичајени су следећи појмови везани за ефикасност:

Релативна ефикасност је номинална перформанса детектора која представља однос ефикасности гама зрака од 1332 keV из <sup>60</sup>Со према ефикасности стандардног сцинтилационог детектора са кристалом NaI(Tl) величине 3"×3".

Апсолутна ефикасност врха укупне енергије је однос површине врха укупне енергије у мереном спектру према броју гама зрака емитованих из извора. Из ње се одређује активност радионуклида у извору, а она, поред осталог, зависи и од геометријске поставке извор-детектор.

Апсолутна тотална ефикасност је однос одброја на ма ком месту у спектру према броју гама зрака емитованих из извора. Овде се узима у обзир врх укупне енергије и све некомплетне апсорпције представљене комптонским континуумом.

Сопствена ефикасност је однос одброја у спектру према броју гама зрака који падну на детектор. Може се дефинисати као сопствена ефикасност врха укупне енергије или као сопствена тотална ефикасност. Ова ефикасност је основну параметар детектора и независна је од геометрије извор-детектор (Slivka et. al., 2000).

## 3.1.1.7 Мртво време

Мртво време детектора (τ) је коначан интервал времена потребан да детектор процесуира догађај, у току којег је немогуће забележити нови догађај. У зависности од типа детектора, детектор може бити али и не мора бити осетљив у интервалу мртвог времена. С обзиром да је природа радиоактивног распада случајна. Германијумски спектрометри нису осетљиви у интервалу мртвог времена, тј. свака информација о фотону који упадне у детектор у току мртвог времена је изгубљена (Leo, 1994).

# 3.1.2 Гасни детектори

Гасни детектор је у основи метална комора пуњена гасом у којој се обично у централном делу налази позитивно наелектрисана жица, анода. Принцип рада приказан је слици 3.1. Крива (б) се односи на бета честицу која пролазећи кроз гас производи  $N_1$  јонских парова. Кривом (а) је приказано формирање  $N_2$  јонских парова проласком алфа честице која депонује већу енергију проласком кроз гас. Проласком наелектрисаних честица кроз гас производе се електрони и позитивни јони. Електрони бивају привучени од стране аноде где се колектују и производе еликтрични инпулс. При ниским напонима између аноде и катоде, електрично поље је мало и значајан број електрона и јона се рекомбинује (слика 3.1 (А)). При довољним вредностима напона скоро сви  $N_1$  и  $N_2$  јонски парови су прикупљени на аноди и катоди, и детектор ради у режиму јонизационе коморе (В). При већим напонима електрони се убрзавају према аноди са енергијама довољним да јонизују и друге атоме, чиме се ствара још већи број електрона. Овакав детектор је познат као пропорционални бројач (С). Ако се напон и даље повећава мултипликација електрона је такође већа (D), а број колектованих електрона је независан од почетне јонизације. На овом принципу ради Geiger Muller-ов

детектор (Е), код којег је карактеристичан висок излазни сигнал без обзира на вредност енергије фотона.



Слика 3.1 Број колектованих јона у зависности од примењеног напона.

## 3.1.2.1 Geiger Muller-ов бројач

Geiger Muller-ови бројачи су распрострањени, једноставни за употребу, јефтини и лаки, те се користе као преносни инструменти за мерење нивоа контаминације у различитим пољима зрачења. Ови бројачи обично имају цилиндричну симетрију. Метални цилиндар служи као катода кроз чију осовину пролази жица од волфрама или нерђајућег челика дебљине 0.02-0.2 mm. Бројач је напуњен мешавином гаса у којој је највећи део 80-90% неког племенитог гаса, најчешће аргона, а остатак могу бити паре алкохола, или других органских супстанци чији молекули имају већи број атома. У последње време се уместо органских пара употребљавају халогени елементи. Принцип рада је, у најкраћем, следећи: при проласку радиоактивног зрачења гас у бројачу се јонизује. Јони долазе до електрода. Тиме се струјно коло у бројачу затвара и појављује напонски импулс. Уређајем за бројање импулса у одређеном интевалу времена добија се информација о интезитету зрачења. Оно што је карактеристично за GM цеви је, да је величина генерисаног инпулса произведеног апсорпцијом нпр. бета честице, независна од количине енергије коју је честица депоновала у гасу. Услед тога ове цеви не могу да региструју енергетску расподелу честица, тј. не дају спектралну карактеристику извора.

Geiger Muller-ова цев не може да се користи за детекцију  $\beta$ -честица веома ниских енергија. То је због тога што се ниско-енергетско  $\beta$  зрачење тотално апсорбује у материјалу прозора детектора, и због тога не може да проузрокује јонизацију гаса у осетљивој запремини детектора.

Пре првог коришћења инструмента и у периодичним интервалима у току континуалног коришћења инструмента, у циљу добијање поузданих резултата, препоручљиво је

проверавати основне карактеристике детектора: фон, карактеристичну криву детектора, и мртво време детектора.

#### Фон

Детектор радиоактивног зрачења ће регистровати инпулсе и у одсуству радиоактивног извора испод активног прозора детектора. Ово је последица природног окружења и природне радиоактивности, а брзина бројања детектора се односи на природни фон. Тако да је у већини случаја неопходно кориговати резултат на тај начин што ће се од укупног броја регистрованих импулса у току одређеног времена одузети фон.

#### График зависности брзине бројања GM цеви од напона

Избор одговарајућег радног напона детектора је основни предуслов за постизање стабилних перформанси GM цеви. Радни напон се утврђује на основу карактеристичне криве зависности брзине бројања детектора од напона за одређену GM цев. Слика 3.2 приказује график зависности брзине бројања, r, за дати радиоактивни извор, у функцији напона напајања.



Слика 3.2 Карактеристична крива GM цеви.

Радни напон се налази на хоризонталном делу карактеристичне криве (плато), и углавном је око 50 V изнад вредности за treshold, која је на почетку платоа. Особине GM цеви могу да се мењају у току времена, и препоручљиво их је периодично проверавати. За исправно функционисање, нагиб криве треба да је мањи од 8% на 100V, а дужина платоа треба да буде 100 V или више.

#### Мртво време

У GM цеви т представља време потребно за прикупљање наелектрисања од аноде до катоде после уласка честице која је јонизовала радни гас. GM цев има релативно лошу временску резолуцију, што одговара већим вредностима за мртво време (100 µs). Временска резолуција савремених појачавача износи 1 µs, и тиме се постиже већа брзина бројања од оне коју детектор може да постигне.

Ако је r – број регистрованих импулса у току јединице времена, R – очекивани или "прави" број импулса у јединици времена, онда се  $\tau$  тј. мртво време по импулсу, може изразити као:

$$\tau = \frac{R - r}{Rr} \tag{3.3}$$

## 3.1.3 Сцинтилациони детектор

Интеракцијом гама зрака са сцинтилатором производи се светлосни импулс који се конвертује у електрични у фотомултипликаторској цеви. Фотомултипликатор се састоји од фотокатоде, фокусирајуће електроде и 10 или више динода које мултиплицирају број елктрона који падају на њих (слика 3.3). Да би детектор имао добре карактеристике сцинтилациони материјал треба да буде транспарентан, расположив у већим димензијама, значајне сцинтилационе ефикасности и да га карактерише висок излазни сигнал пропорционалан енергији гама зрачења.



Слика 3.3 Структура NaI(Tl) сцинтилационог детектора.

Сцинтилациона ефикасност је део енергије свих упадних честица који се конвертује у енергију светлости. Јасно је да је детектор тим бољи што је сцинтилациона ефикасност већа. Међутим, постоји низ других процеса деексцитација који не доводе до емисије светлости, већ углавном доводе до трансформације енергије у топлоту. Сви ови нерадијациони процеси се једним именом називају "гашења".

Користи се неколико типова сцинтилатора: чисти органски кристали, течни органски раствори, пластични сцинтилатори, танки-филм сцинтилатори и неоргански кристални сцинтилатори. Антрацен је свакако најстарији чисти органски сцинтилатор; има највећу сцинтилациону ефикасност у односу на све остале органске сцинтилаторе. Стилбен је

други чисти органски сцинтилатор, са нижом сцинтилационом ефикасношћу али са предностима по питању резолуције. Оба ова кристала су лако ломљива и тешко се израђују велики кристали. Поред сцинтилатора у чврстом агрегатном стању у употреби су и течни сцинтилатори. Добијају се растварањем органских сцинтилатора у одговарајућем растварачу. Погодни су за добијање веома великих детектора (реда  $m^3$ ). Примењују се за мерење активности радиоактивних материјала који се растворе у сцинтилациони раствор. У сличају да је извор зрачења бета емитер може се постићи и до 100 % ефикасност детекције. Течни сцинтилатори се користе за мерење чистих бета емитера као што су <sup>14</sup>C i <sup>3</sup>H. Ако се органски сцинтилатор раствори у растварачу који се поактични сцинтилатори. Ова врста детектора је јефтина, лако се произоди и лако обликује према потреби те су широко заступљени.

Један од најпознатијих и најчешће коришћених сцинтилатора је NaI(Tl) (натријум јодид активиран талијумом). Открићем овог сцинтилатора започела је ера модерне сцинтилационе спектроскопије. Детектори на бази NaI(Tl) се могу производити у разним облицима. Висока вредност Z јода утиче на добру ефикасност детектора за детекцију гама зрачења. Мала количина талијума у кристалној решетки служи за активацију кристала. На овај начин се забрањена зона чистог кристала мења, стварањем енергетских стања помоћу којих електрон може да се де-екцитира назад у валентну зону емисијом светлости (слика 3.4).



Слика 3.4 Шема енергетских нивоа код кристала NaI(Tl).

Главна карактеристика овог сцинтилатора је велики светлосни принос, највећи од свих познатих сцинтилационих материјала и економичност. Време трајања сцинтилационог импулса је 230 ns али има и закаснеле емисије фосфоресцентне светлости у времену 0.15 s. Постоје и друге компоненте фосфоресценције и при ниским брзинама бројања свака од тих компоненти изазива лажне импулсе. Ова особина NaI(Tl) кристала је неповољна при проучавању појединих елекронских догађаја. Остале лоше стране овог детектора су хигроскопност и кртост тј. ломљивост и мала енергетска резолуција у односу на полупроводичке детекторе (слика 3.5).



Слика 3.5 Поређење спектра добијеног NaI (Tl) и НРGе детектором.

Као и сви други неоргански сцинтилатори NaI(Tl) показује малу али мерљиву непропорционалност сцинтилационог одзива са депонованом енергијом у кристалу. Шема експерименталног setup-a са NaI(Tl) детектором приказана је на слици 3.6.



Слика 3.6 Шема класичног експерименталног setup-a NaI(Tl) детектора.
### 3.1.4 Полупроводнички детектори

Полупроводник је материјал који може да се понаша и као проводник и као изолатор. Проводност је директно повезана са електронском структуром материјала. Полупроводници имају уску забрањену зону између попуњених и непопуњених енергетских нивоа, тако да електрони који добију малу додатну енергију могу прескочити забрањену зону (Eg) и постати покретни (слика 3.7). Главна разлика између изолатора и полупроводника лежи у вредности за Eg. За изолаторе је типично  $E_g > 5eV$ , док је за полупроводнике у опсегу око 1eV. Пошто енергија електрона зависи од температуре, и проводност полупроводника зависи од температуре.



Слика 3.7 Структурна зона полупроводничког материјала.

На апсолутној нули, нема термички генерисаних електрона у проводној зони и полупроводник је одличан изолатор. Како се темепература расте, неки електрони добијају довољно енергије да пређу у проводну зону. Концентрација електрона у проводној области (n<sub>i</sub>) се може представити Boltzmann-овом расподелом:

$$n_i = CT^{l.5} \exp\left(-\frac{B}{T}\right) \tag{3.4}$$

где су *С* и *В* константе, а *Т*-температура. Како се настанком једног електрона формира једна шупљина, густина шупљина је такође једнака n<sub>i</sub>. Док је отпорност дата изразом

$$\rho = \left(ne\mu_e + pe\mu_h\right)^{-1} \tag{3.5}$$

где је n-густина негативних носиоца наелектрисања, p-густина позитивних носиоца наелектрисања, e-је наелектрисање, а  $\mu$ -мобилност. Да би полупроводнички материјал могао да се користи за детекцију зрачења треба да га одликују следеће особине: способност подношења јаког градијента електричног поља, висока отпорност и мобилност електрона и шупљина. Уколико је мобилност превише мала и мало време живота, већина електрона и шупљина ће бити заробљено у нечистоћама кристалне решетке и бити рекомбиновано пре него што се колектују на електродама.

У четвртој групи периодног система, силицијум и германијум су елементи који се најчешће користе као полупроводнички материјали у детекторима. Кристал чистог силицијума има правилну структуру у којој атоми задржавају свој положај помоћу ковалентних веза које формирају четири валентна електрона која се налазе у највишем енергетском стању. На собној температури ковалентне везе су довољно чврсте тако да је број слободних електрона веома мали. Због тога је специфична проводност чистог кристала силицијума веома мала. Ако се силицијуму дода мала количина примеса од материјала који има пет валентних електрона (фосфор, арсен или други елементи 5. групе), појавиће се вишак слободних електрона који знатно повећава проводност силицијума. Такве примесе се називају донорске примесе јер дају електроне, а тако допирани силицијум се назива n-тип силицијума, јер има више слободних носилаца негативног наелектрисања (електрона) него шупљина. Ако се силицијуму дода мала количина примеса од материјала који има три валентна електрона (бор, индијум, или други елементи 3. групе), појавиће се вишак шупљина, који такође повећава проводност силицијума. Такве примесе се називају акцепторске примесе јер привлаче (примају) слободне електроне, а тако допирани силицијум се назива р-тип силицијума, јер има више слободних носилаца позитивног наелектрисања (шупљина) него електрона. Ако се направи блиски контакт (спој) материјала n-типа и материјала р-типа добија се тзв. pn спој или диода.

У случају рп споја долази до прелаза слободних већинских носилаца наелектрисања преко споја у другу област и до њихове рекомбинације. У близини споја остају само непокретни наелектрисани атоми. Та област се назива осиромашена област јер у њој нема слободних носилаца наелектрисања. Непокретна наелектрисања формирају електрично поље у осиромашеној области. То електрично поље се супротставља даљем кретању носилаца преко споја. На споју се појављује мала разлика напона, која се потенцијална баријера. Величина потенцијалне баријере назива зависи ОД полупроводничког материјала и нивоа допирања примесама. Код силицијума потенцијална баријера је у границама од 0.6 V до 0.8 V, а код германијума свега 0.2 V. Величина потенцијалне баријере се не може измерити мерењем напона између аноде и катоде, јер постоје и контактни потенцијали на спојевима метал-полупроводник код прикључака диоде.

Када је pn спој неполарисан, он може да ради као детектор али са веома слабим перформансама због тога што је осиромашена област уска, капацитет споја је велики, и спонтано формирано електрично поље споја је мало и недовољно да колектује индукована наелектрисања. Перформансе pn споја у случају детектора зрачења се побољшавају прикључивањем спољашњег напона који ће инверзно поларизовати диоду Слика 3.8. Како се спољашњи напон повећава, ширина испражњене области се повећава као и осетљива запремина, тај регион постаје изолатор и перформансе детектора се побољшавају.



Слика 3.8 Струје и расподела наелектрисања на инверзно поларисаном пн споју (I<sub>D</sub>струја главних носилаца, I<sub>E</sub>-струја споредних носилаца).

Када фотони (или наелектрисане честице) интерагују у осиромашеној области, долази до ослобађања носиоца наелектрисања (електрона и шупљина) који се услед електричног поља колектују на електродама. Резултујуће наелектрисање се интегрише осетљивим предпојачавачем и конвертује у појачавачу у напонски импулс који је пропорционалан сопственој енергији фотона (честице). С обзиром да је ширина осиромашене области инверзно пропорционална концентрацији нечистоћа, и с обзиром да је ефикасност детекције такође зависна од чистоће материјала, велике запремине врло чистих материјала осигуравају високу ефикасност бројања високо енергетских фотона (честица). С обзиром да уска забрањена зона код полупроводника ( 0.74 eV за Ge и 1.12 eV за Si) утиче на то да је потребна мања енергија за производњу пара електрон-шупљина него код гасова они имају много бољу енергетску резолуцију од гасних детектора.



Слика 3.9 Ширина испражњене области PIPS детектора у функцији од напона а) делимично осиромашена област b) потпуно осиромашена област.

PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) Si детектор (слика 3.9), који је коришћен у овом раду за бета спектрометријска мерења, је производ модерне полупроводничке технологије. Предњи контакт ( Al прозор) детектора је јонски имплантиран. Canberra је развила технику за минимизирање дебљине прозора задржавајући робусност, поузданост и стабилност контакта (Canberra, 2000). PIPS детектор има прозор који је битно тањи (< 500 Å) од прозора конвенционалних детектора који не само да побољшава резолуцију детектора него и његову ефикасност с обзиром на могућност мањих растојања извор-детектор. С обзиром на другачију технологију наношења металног контакта, који код PIPS детектора није напарен него површински пасивизиран, значајно је отпорнији и може се додиривати и чистити. Si полупроводнички детектор серије PD450-15-500AM† је state-of-art у спектроскопији

наелектрисаних честица. Префикс PD сугерише на ширину испражњене области и намену детектора. Остале ознаке серијског броја означавају величину активне површине детектора (450 m<sup>2</sup>) и дебљину активне зоне Si кристала која износи 502 µm. Ради побољшања резолуције овај модел детектора има предњи прозор од алуминијума дебљине 200 Å (†). Геометрија самог детектора биће описана детаљније у потпоглављу 4.3–Геометријски модел полупроводничког силицијумског детектора.

# 3.2 Минимална детектабилна активност (МДА)

## 3.2.1 Границе статистичких одлучивања

Постоје многе примене детекције гама и бета рачења, као што је процена радиоактивних примеса у узорку или површинска контаминација где је веома важно дефинисати границу детекције за испитивано зрачење. Она ће зависити од много фактора као што су: величина и састав узорка, енергија зрачења, растојање узорка од детектора, ефикасност детектора, брзина бројања фона, расположиво време мерења. Статистички одређени нивои који су у ствари одговори на следећа питања су (Slivka et. al., 2000):

- Критична граница L<sub>c</sub> ниво одлуке: "да ли је нето одброј значајан?"
- Горња граница L<sub>u</sub> –,,ако овај одброј није статистички значајан, који ће бити максимални статистички разуман одброј?"
- Граница детекције L<sub>d</sub> "колики треба да је минимални одброј да можемо бити уверени да је нешто детектовано?"
- Граница одређивања L<sub>q</sub> "колики одброј морамо имати да постигнемо дату статистичку несигурност"
- Минимална детектабилна активност МДА "колики је најмањи износ активности коју можемо измерити"

## 3.2.2 Критична граница

Претпоставимо да је неки узорак потпуно без радиоактивности мерен много пута. Добио би се низ одброја, уствари одброја фона, за које би нето средња вредност била нула, док би расподела била Гаусова, испод и изнад нуле. На слици 3.10 означићемо стандардну девијацију ове расподеле са  $\sigma_0$ .

Како можемо одлучити да ли је нека измерена вредност неке величине блиске нули стварно нула или представља истински позитивни одброј? Мора постојати неки ниво, кога зовемо *критична граница* изнад кога можемо бити уверени, до одређеног степена, да је нето одброј ваљан. Можемо одлучити да смо уверени да одброј А постоји ако је већи од неког броја стандардних девијација расподеле одброја, тј. ако је  $A > k_{\alpha}\sigma_{0}$ , одброј је статистички значајан, а ако је  $A \le k_{\alpha}\sigma_{0}$ , одброј није значајан.

Фактор  $k_{\alpha}$  може се изабрати тако да обезбеди унапред одређен степен поверења у закњучак. На пример, можемо сматрати прихватњивим да, ако се догодило да је одброј баш на критичној граници, има 5% шансе да је постојао одброј, иако га уствари није било. Другачије речено, 95% смо сигурни да одброј није статистички значајан. У овом случају, изражавајући се терминима статистичке вероватноће, пишемо  $\alpha = 0.05$  и из статистичких табела за једнострану вероватноћу нормалне расподеле налазимо  $k_{\alpha} = 1.645$ . Једнострану вероватноћу користиомо зато што смо заинтересовани за прекорачење нивоа само на једној, вишој, страни расподеле. Дакле,

$$L_c = 1.645 \sigma_0$$
 (граница поверења 95%) (3.6)

У пракси се ово примењује на следећи начин: ако је нето одброј већи од  $L_c$ , можемо рећи да је детектована активност и можемо са правом навести вредност са одговарајућом несигурнишћу (границом поверења). У супротном случају, морамо закључити да је узорак без активности и навести горњу границу. Може се изабрати и граница поверења другачија од 95% са одговарајућом другом вредношћу за  $k_{\alpha}$ . Којагод вредност се изабере, она треба да је усклађена у целом систему извештаја о извршеним мерењима.



Слика 3.10 Критична вредност L<sub>с.</sub>

У пракси не познајемо  $\sigma_0$ , стандардну девијацију (несигурност) расподеле нето одброја. Све што имамо су процене узорка и фона. Имајући на уму да је var(A-B) = var(A) + var(B) и да је варијација одброја једнака одброју, можемо извести за нето одброј N=C-B (C – укупан одброј, B – одброј фона):

$$var(N) = N + B + var(B). \tag{3.7}$$

Сада је

$$\sigma_0^2 = \operatorname{var}(N=0) = B + \operatorname{var}(B) \tag{3.8}$$

У случају једноканалног бројања, или ако се *C* и *B* одређују из истог броја канала, важи var(B) = B,  $\sigma_0^2 = 2B$ , па је критична граница, за ниво поверења од 95% једнака

33

$$L_c = 1.645\sqrt{2B} = 2.33\sqrt{B}$$
(3.9)

### 3.2.3 Граница детекције

Критична граница је процена *a posteriori*, заснована на стварно мереним одбројима. Граница детекције одговара на *a priori* питање "ако треба да измеримо активност узорка, колика би морала бити брзина одброја, за детекцију са, рецимо 95% сигурношћу". То се често брка са критичном границом. Међутим, ако се догоди да је активност узорка баш  $L_c$ , тада бисмо могли да будемо сигурни (95% сигурни) да је дошло до детекције само у 50% случајева, зато што би одброји били распоређени симетрично око  $L_c$ . Јасно да граница детекције  $L_d$  мора бити нешто изнад  $L_c$ .

Претпоставимо да имамо узорак такве активности која ће дати одброј тачно на граници детекције нашег система. Расподела одброја, ако бисмо узорак мерили много пута, имала би стандардну девијацију  $\sigma_d$ . Хоћемо да будемо сигурни, до степена одређеног са k<sub>β</sub>, да је шанса да не детектујемо активност, када је уствари има, само β, па је тада

$$L_d = L_c + k_\beta \sigma_d. \tag{3.10}$$

Ако се за  $\alpha$  и  $\beta$  узме 0.05 (што је згодно, али не и обавезно), тада је  $k_{\alpha} = k_{\beta} = 1.645$ . У случају једноканалног бројања, и ако је нето одброј једнак граници детекције (тј. N = C- $B u N = L_d$ ), можемо закључити следеће:

- Варијанција расподеле одброја је  $\sigma_d^2 = C + B$ ,
- На граници детекције укупни одброј мора бити  $C = L_d + B$ ,
- За једноканално бројање  $\sigma_0^2 = 2B$
- Комбинујући горње  $\sigma_d^2 = L_d + \sigma_0^2$  имамо  $L_d = k_\alpha \sigma_0 + k_\alpha \sqrt{L_d + \sigma_0^2}$

Решавајући ову једначину, добијамо једноставну релацију

$$L_d = k_\alpha^2 + 2k_\alpha \sigma_0. \tag{3.11}$$

Стављајући k<sub> $\alpha$ </sub> =1.645 и имајући на уму да је  $\sigma_0^2 = 2B$ , добијамо

$$L_d = 2.71 + 4.65\sqrt{B} \tag{3.12}$$



Слика 3.11 Граница детекције L<sub>d.</sub>

Претпоставка да стандардна девијација одброја  $\sigma_d$  је приближно једнака стандардној девијацији фона увелико упрошћава израз за L<sub>d</sub>, и обично важи за тотални одброј већи од 70 (Brodsky, 1992). Brodsky је такође утврдио да у случају веома ниског фона се израз (3.12) може свести, базирајући се на Поасоновој расподели (Brodsky et. al., 1991), на:

$$L_d = 3 + 4.65\sqrt{B}.$$
 (3.13)

Израз за минималну детектабилну активност (МДА) узорка директно произилази из концепта за L<sub>d</sub>. То је минимиални ниво радиоактивности, било на површини или унутар запремине узорка, које се може измерити одређеном методологијом, или мерном процедуром (Brodsky, 1993). Израз за МДА је дат као:

$$MDA = \frac{3 + 4.65\sqrt{B}}{KT} \tag{3.14}$$

где је K- константа пропорционалности која се односи на одговор детектора на одређен ниво активности узорка за дате мерне услове, и T је време мерења. Овај фактор обично обухвата ефикасност детектора, фактор абсорпције и активну површину детектора.

# 3.3 Методе за одређивање површинске контаминације

Мерење површинске активности представља важан аспект у декомисији нуклеарних реактора,контроли радиоактивног отпада и такође у заштити људи и животне средине. Многи материјали који нису били значајно изложени неутронском флуксу тј. активирани, могу се деконтаминирати после процеса карактеризације и поново користити. То се углавном односи на материјале који су направљени од нерђајућег челика, чије површине за већину радионуклида не представљају абсорбер. Остали метали такође спадају у ту категорију, док материјали попут бетона и дрвета абсорбују честице на површини. Проблем може да прави и присутсво боје на површини, која се наноси због заштите али исто тако може да служи везивању (фиксирању) скидљиве контаминације (раније се често примењивала та техника). Одређивање површинске контаминације углавном се спроводи на већим равним површинама, али методологија се може применити и на унутрашње површине цеви и канала уколико је облик детектора погодан.

Површинска контаминација се може проценити на основу директног или индиректног метода мерења. Директна мерења се спроводе користећи инструменте и мониторе који дају одзив на укупну површинску контаминацију, скидљиву и везану. Индиректна мерења се углавном односе на коришћење брисева којима се процењује скидљива површинска контаминација. Циљ одређивања површинске контаминације је:

- у првом реду, да се контаминација детектује, односно утврди њено присуство, и одреди распрострањеност како би се утврдила евентуална миграција радионуклида од високо контаминираних површина ка ниско контаминираним или неактивним површинама и
- друго, да се одреди активност по јединици површине како би се утврдило да ли је превазиђен дозвољен ниво контаминације.

Применљивост и поузданост било које методе у постизању ових циљева строго зависи од специфичних услова нпр. физичког и хемијског карактера контаминације, приањања контаминације на површину (скидљива или фиксирана), приступачност површине и интерференција различитих врста зрачења. Услед варијације ефикасности детектора са емитованом енергијом зрачења, велика пажња се мора посветити одређивању површинских активности у присуству извора који емитују различите врсте зрачења.

### Критеријуми за реализацију

Инструменти који се користе за ову намену треба да буду способни за мерење површинских активности које су испод граничних вредности постављених од стране регулаторног тела или дефинисаних стандардом. Према томе, минимална количина радиоактивности која може бити детектована датим инструментом и одређеном методом треба да буде утврђена. "National provisions on the conditions for the traffic and use of radioactive materials and devices that produce ionizing radiation (1998)" je предложила вредности за специфичну и тоталну активност радионуклида изнад које се материјал може сматрати радиоактивним. Специјална брига се посвећује одређивању граничног нивоа зрачења и контаминације предмета и површина за неограничену употребу (тј. clearance levels). Према (IAEA, 1994) и (IAEA, 1998) различите вредности за clearance levels су усвојене, табела 3.1.

	Активност	Површинск	Брзина		
Земља	[Bq/g]	скидљива	везана	тотална	дозе [µSv/h]
USA истраживачки реактори		0.003 (α) 0.15 (β, γ)		0.015 (α) 0.8 (β, γ)	$0.05^{a}$
Commission of the European Communities	1.0	0.4 (β, γ)	0.04 (α)		

Габела 3.1 Пракса и предлог за коришћење "Unrestricted Re	Release	Criteria"
---	---------	-----------

<sup>1)</sup> изнад нивоа земље на тој локацији

С обзиром да су вредности за clearance levels на америчким истраживачким реакторима конзервативније, оне су се користиле као критеријум у процесу декомисије истраживачког реактора "PA" (Milošević et al., 2003).

### 3.3.1 Директна мерења површинских активности

Бета/алфа активност (скидљива и везана) по јединици површине се може одредити на основу израза (ISO, 1988);

$$A = \frac{C - B}{\varepsilon_i \cdot \varepsilon_s \cdot W} = \frac{C - B}{\varepsilon_{tot} \cdot W}$$
(3.15)

где је C – брзина бројања сонде [s<sup>-1</sup>]; B – брзина бројања сонде за фон [s<sup>-1</sup>];  $\varepsilon_i$  – ефикасност детектора,  $\varepsilon_s$  – ефикасност извора и W – активна површина детектора (cm<sup>2</sup>). На основу овог израза јасно се уочава разлика између ефикасности детектора и ефикасности извора. Производ ове две ефикасности даје тоталну ефикасност детектора  $\varepsilon_{tot}$ . Овај приступ који се базира на активности, урачунава калибрациони фактор  $\varepsilon_{tot}$ који није јединствен него строго зависи и од самог извора. Ово није проблем када калибрациони извор поседује исте карактеристике као контаминирана површина – укључујући спектар зрачења, ефекат расејања, апсорпцију, геометрију извора. У пракси углавном није тако, јер чешће се дешава да се тотална ефикасност одређује у специфичним условима користећи стандардне калибрационе изворе, а потом се тако одређена ефикаснот користи у реалним условима, у којима се често дешава запрљаност површине чија се активност одређује или се ради о извору који емитује различиту енергију зрачења од калибрационог извора. Раздвајањем ефикасности на две компоненте, узимају се у обзир реалне карактеристике контаминиране површине, а тиме и реална процена ефикасности детектора. Дефиниције појмова приказане у табели 3.2 (ISO, 1988) су представљене на основу величина означених на вертикалном пресеку детектора слика 3.12.



Слика 3.12 Вертикални пресек комбинације детектор – извор.

Табела 3.2	Термини,	симболи,	јединице	и дефини	ције в	величина	које с	се јавл	ьају	y
	прог	цесима де	текције по	овршински	их акт	ивности				

1 '	11	1	
Термин	Симбол	Јединица	Дефиниција
Активност извора	А	Bq	$A = q_1 + q_2 + q_3 + q_4 + q_5 + q_6$
Емисија ивора	$q_{2\pi}$	$s^{-1}$	$q_{2\pi} = q_1 + q_2 + q_3 + q_5$
Ефикасност извора	ε <sub>s</sub>	-	$\varepsilon_s = \frac{q_1 + q_2 + q_3 + q_5}{q_1 + q_2 + q_3 + q_4 + q_5 + q_6} = \frac{q_{2\pi}}{A}$
Ефикасност детектора	ε <sub>i</sub>	-	$\varepsilon_i = \frac{n}{q_1 + q_2 + q_3 + q_5}$
Одзив детектора на активност (A)	R <sub>i</sub>	-	$R_i = \varepsilon_i \times \varepsilon_s = \frac{n}{A}$

Ефикасност детектора се дефинише као однос између брзине бројања инструмента и брзине емисије извора одговарајуће геометрије. Брзина емисије извора  $q_{2\pi}$  се дефинише као "број честица одређеног типа изнад одређене вредности енергије које

напуштају горњу страну површине извора у јединици времена у просторном углу 2π". На основу овога ефикасност детектора се може изразити као:

$$\varepsilon_i = \frac{C - B}{q_{2\pi}} \tag{3.16}$$

Ефикасност детектора се одређује у процесу калибрације, за познату емисију стандардног извора у  $2\pi$  или за познату активност извора, која је дата од стране произвођача и сертификована од стране National Institute of Standards and Technology (NIST). Калибрација GM сонде на основу емисије, пре него активности извора, омогућава поређење инструмената у смислу њихове осетљивости и јасно прави разлику између ефикасности детектора  $\varepsilon_{I}$  и ефикасности извора  $\varepsilon_{s}$ .

Ефикасност извора  $\varepsilon_s$  се дефинише као однос броја честица одређене врсте које се емитују са горње (предње) стране извора и укупног броја честица које се стварају и емитују у извору у јединици времена (ISO, 1988). Ефикасност извора (или површинска ефикасност) узима у обзир повећану емисију честица услед ефекта расејања као и смањење емисије услед ефекта само-апсорпције. На ову вредност утичу тип зрачења и енергија, униформност извора, храпавост и остале карактеристике површинског слоја извора. За идеалан извор (без ефеката расејања и само-апсорпције), вредност за  $\varepsilon_s$ износи 0.5. Док се, као резултат конзервативних претпоставки и у недостатку прецизнијих вредности, за вредности  $\varepsilon_s$  према (ISO, 1988) узимају следеће вредности:

$$\varepsilon_{s} = 0,5$$
 за бета емитере енергије  $E_{\beta max} \ge 0,4 \text{ MeV}$   
 $\varepsilon_{s} = 0,25$  за бета емитере енергије  $0,15 \text{ MeV} < E_{\beta max} < 0.4 \text{ MeV}.$  (3.17)

### 3.3.1.1 Радиоактивни извори за калибрацију

За прецизна мерења тоталне површинске активности, од есенцијалне важности је да инструменти буду добро калибрисани. МДА за дати тип инструмента зависи од много параметара, као што је и избор калибрационог извора. Калибрациони извори треба да буду тако изабрани да емитују алфа или бета зрачење сличних енергија које се очекују у реалном пољу зрачења. На објектима и у лабораторијама где се користе различити радионуклиди који емитују различите спектре бета зрачења, практично је да се користи ефикасност детектора за одређени опсег бета зрачења. То ће обезбедити да бета енергија референтног извора није значајно већа од најниже енергије која се мери. Ефикасност детектора треба да се одреди у познатим геометријским условима који треба да су приближно исти реалним условима директних или индиректних мерења. Радионуклиди који су прикладни за референтне изворе су:

<sup>14</sup>C ( $E_{\beta max} = 0.154 \text{ MeV}$ ) <sup>147</sup>Pm ( $E_{\beta max} = 0.225 \text{ MeV}$ ) <sup>36</sup>Cl ( $E_{\beta max} = 0.71 \text{ MeV}$ ) <sup>204</sup>Tl ( $E_{\beta max} = 0.77 \text{ MeV}$ ) <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y ( $E_{\beta max} = 2.26 \text{ MeV}$ ) <sup>106</sup>Ru/<sup>106</sup>Rh ( $E_{\beta max} = 3.54 \text{ MeV}$ )

State-of-art у калибрацији сонди за мерење површинских активности је познавање емисије честица у просторном углу  $2\pi$ . У Certificate-има стандардних извора ове вредности су дате поред вредности за укупну активност на датум калибрације стандардног извора. Основне карактеририке калибрационих извора коришћених у процесима калибрације сонди у овом раду представљене су у табели 3.3.

Табела 3.3 Основне карактеристике калибрационих извора коришћених у раду.

Радионуклид	Активност [Вq]	Емисија [β/s·2π]	Датум калибрације	φ [cm]
<sup>90</sup> Sr/ <sup>90</sup> Y	$1.33 \cdot 10^3$	$1.73 \cdot 10^{3}$	02.11.2004.	2.03
<sup>90</sup> Sr/ <sup>90</sup> Y	14600	15500	18.03.2004.	1.9
<sup>36</sup> Cl	414	257	16.03.2004.	1.9

### 3.3.2 Индиректна мерења површинске активности

Мерење активности на равним полираним површинама углавном се изводи коришћењем брисева (мокри и суви) и стационарних детектора са заштитом. Процедура се односи на скидљиву активност, тј. ону која није везана за површину. Како би се постигла хомогена дистрибуција радионуклида, површина се дели на три једнака дела. Са сваког дела брис се узима на идентичан начин (1 ml раствора је направљен од 1/3 воде и 2/3 алкохола).

Површинска активност са зидова и подова се одређује узимањем бриса са 300 cm<sup>2</sup> површине. Процедура је следећа: површина од 300 cm<sup>2</sup> се грубо подели на три једнака дела, што се постиже коришћењем правоугаоног рама. За сваки део, који приближно износи 100 cm<sup>2</sup>, се користи један брис који се потом стави у посебну малу пластичну кутију. На слици 3.12 су приказани брисеви, метални рам са унутрашњом површином од 300 cm<sup>2</sup>, и неколико пластичних кутијица припремљених за гама спектрометријска мерења. За потенцијално контаминиране површине, користе се метални рамови у облику прстена унутрашње површине од 100 cm<sup>2</sup>. Са ових површина узимају се

углавном суви брисеви, коришћењем филтер папира као што је Whatman, чије се активности након тога мере одговарајућим детектором.



Слика 3.12 Метални рам унутрашње површине од 300 cm<sup>2</sup>, брисеви и пластичне кутије.

Процедура је слична као и у случају влажног бриса. Узимају се три бриса, сваки за 1/3 површине у оквиру рама (слика 3.13). Такође се користе типичне пластичне кутије за гама спектрометријска мерења. Коначна вредност за површинску активност се добија дељењем измерене тоталне активности са површином (300 cm<sup>2</sup> или 100 cm<sup>2</sup>) са које је узет брис, и изражава се у Bq/cm<sup>2</sup>.



Слика 3.13 Слика брисева, рама 100 ст<sup>2</sup>, и пластичних кутија.

# 3.4 Спектрометријске методе

Најдетаљнија анализа радионуклида на некој површини или у одређеној запремини узорка добија се коришћењем спектрометрије. Она се користи када се однос радионуклида са временом мења или је непознат у узорку. Спектрометрија може да се користи у случају  $\alpha$ ,  $\beta$ , или  $\gamma$  емитера, у карактеризацији течног, чврстог радиоактивног отпада и ваздуха. In situ гама мерења се често користе за карактеризацију равних површина и земљишта, док се за неприступачна места често прибегава индиректним мерењима.

### 3.4.1 Гама спектрометрија

Гама зраци настају при деексцитацији побуђених стања у језгрима атома. Та побуђена стања могу бити попуњена путем нуклеарних реакција и радиоактивним распадом. Језгро је окарактерисано дискретним енергијским нивоима. Електромагнетни таласи који се емитују при прелазу између ових нивоа су реда величине неколико стотина keV-а до неколико MeV-а, те сведоче о великој енергији везе нуклеона. У гама спектрометрији се најважнији параметри зрачења, емитоване енергије и релативни интензитети појединих енергетских прелаза, одређују на тај начин што се спектрометром снима спектар, па се затим врши његова анализа (слика 3.14). Резултати мерења се добијају обрадом слике, коју даје мерни инструмент па је због тога неопходно дефинисати основне карактеристике мерног инструмента и најважније појмове којима се мерене величине у инструменталној слици региструју.



Слика 3.14 Један део спектра <sup>152</sup>Еи добијен помоћу геманијумског детектора.

На слици 3.14 је представљен типични визуелни приказ гама спектра снимљен германијумским детектором. Визуелни приказ снимљеног спектра је данас саставни део софтвера за обраду спектра. Један од задатака гама спектрометрије је идентификација присутних језгара у непознатим узорцима. Спектар емитованих фотона при распаду језгра даје индиректну информацију о самом језгру које се распало. Одређивање концентрације активности испитиваног узорка могуће је комплетном обрадом спектра,

што се чини уз помоћ софтвера за гама спектрометрију. Уз претходно извршену енергетску калибрацију спектрометра, софтвер може аутоматски идентификовати присутна језгра. Одређивање активности захтева познавање ефикасности врха укупне енергије за постављену геометрију. Она се израчунава на основу формуле:

$$A_i = \frac{C_{ij}}{t \cdot \varepsilon_{ij} Y_{ij}} \tag{3.18}$$

где је  $A_i$  –активност i-тог радиониклида у Bq/kg или у Bq/l,  $C_{ij}$ –укупан број импулса испод линије енергије (j) измерених за време t,  $Y_{ij}$  -вероватноћа емисије гама фотона енергије (j),  $\varepsilon_{ij}$ –ефикасност детектора за енергију (j) радионуклида (i).

#### 3.4.2 Бета-спектрометрија

Бета честица је у основи сваки електрон који се емитује из језгра нестабилног радионуклида. Емисија бета честице се дешава под одређеним условима у којима нуклиди са вишком неутрона постижу стабилност конверзијом неутрона у протон. При конверзији, поред емисије бета честице емитује се и антинеутрино, тако да је енергетски спектар бета честице континуалан, тј. бета честица може да поседује енергију од 0 до  $E_{\text{мах}}$  (слика 3.15). Континуални спектар бета честица емитованих из радиоактивног извора је објаснио Fermi (Fermi , 1934). Поред континуалних енергија бета честица спектри неких радионуклида могу да садрже дискретне линије које су последица процеса интерне конверзије електрона.



Слика 3.15 Бета спектар радионуклида <sup>210</sup>Ві.

Услед континуалне природе енергетског спектра бета честица, спектрометријска идентификација и квантификација узорка који садржи неколико радионуклида бета емитера је генерално тешка. Због тога је радиохемијска сепарација различитих бета емитера у узорцима есенцијална. Уколико бета распад радионуклида прати интерна конверзија електрона, тада се у спектру јављају дискретне линије које олакшавају идентификацију датог радионуклида. Више речи о методама детекције бета емитера биће у следећем поглављу.

### 3.5 Корелациони метод за мерење тешко-мерљивих радионуклида

Међу широким спектром радионуклида који се могу наћи на затвореном нуклеарном постројењу, постоји неколико радионуклида који имају сличне карактеристике као што је нпр. емисија нискоенергетског зрачења које је тешко или скоро немогуће измерити у присутву других, високо енергетских емитера. Метод који омогућава реалну процену ниско-енергетских радионуклида у мешавини различитих радиоактивних супстанци је тзв. корелациони или метод scaling factor-a (у некој литерататури познат и под називом "fingerprinting" (McMillan, 1995). Показано је да концентрације радионуклида који не емитују у зрачење могу понекад бити у корелацији са концентрацијом радионуклида који емитују снажно у зрачење тј. да се за одређене тешко-мерљиве радионуклиде може успоставити одговарајућа релација са одређеним високо-енергетским у емитерима. Треба напоменути да је scaling factor за различите радионуклиде временски и просторно зависна величина и да се мора бити обазрив у његовој употреби. Неопходно је утврдити релативан однос радионуклида у смеси узорковањем и лабораторијском анализом. Ове вредности, потом, треба да буду кориговане у зависности од времена полураспада. Када је веза утврђена, могуће је директним мерењем снажних у емитера утврдити концентрацију тешко-мерљивих радионуклида у узорку.

Коришћење корелационог метода мерења може у великој мери да редукује број узорока који би у супротности били узети и анализирани, чиме се значајно смањује време и цена процеса карактеризације. За статистички значајну корелацију, ипак је неопходно урадити значајан број мерења и анализа. Та мерења су временски и материјално захтевна и подразумевају низ радиолошких и радиохемијских процеса сепарације које су описане у литератури (Gutwein et al., 1981; EC, 1995; US NRC, 1991; SCK/CEN, 1993; EPRI, 1985; US NRC, 1985; Dierkes et al.,1995). Додатна објашњена везана за коришћење различитих математичких алата у обради резултата могу се наћи у литератури (IAEA, 1998).

Упаривање различитих радионуклида за формирање scaling factor-а може се категоризовати у три класе: активирани корозионо/ерозиони продукти, фисиони продукти и актиниди.

### 3.5.1 Неутронски активирани корозионо/ерозиони продукти

У активираним материјалима, тешко мерљиви радионуклиди, као што су  $^{55}$ Fe,  $^{59, 63}$ Ni, и  $^{94}$ Nb, могу се "упарити" са  $^{60}$ Co, који је готово увек присутан радионуклид на угашеном нуклеарном постројењу, има релативно дуг период полу-живота и једноставно се мери.

У случају <sup>55</sup>Fe/<sup>60</sup>Co, радионуклид гвожђа је главни представник категорије радионуклида који имају полу-животе мање од пет година. Оба радионуклида се производе захватом термалног неутрона у челичним компонентама и због њихове колоидалне природе у реакторском колу, ова корелација је вероватна. Слично је за <sup>59, 63</sup>Ni/<sup>60</sup>Co, оба радионуклида се производе на исти начин и реалативно су нерастворљива или колоидална у хемијски неутралним воденим срединама (US NRC, 1985). Нешто је другачија релација између <sup>94</sup>Nb и <sup>60</sup>Co; ниобијум је не тако значајан конституент у нерђајућем челику и елеменат у трагу у легурама базираним на угљенику и никлу. Ако је концентрација ниобијума у овим материјалима релативно константна, корелациони фактор се може формирати. Међутим, у неким случајевима, концентрације <sup>94</sup>Nb могу бити испод минималне детектабилне активности, што може проузроковати велике разлике у процени корелационог фактора. За активирани бетон и графит, овај метод је још увек недовољно проучен и захтева детаљније истраживање у овој области.

### 3.5.2 Фисиони продукти

Међу фисионим продуктима, растворљив радионуклид <sup>137</sup>Cs је скоро увек присутан у радиоактивном узорку, има релативно дуго време полураспада (30 г.) и лако се мери гама спетрометријском методом. Овај радионуклид је услед тога пожељан кандидат за метод scaling factor-a у корелацији са  $\beta$  емитујућим фисионим продуктима као што су <sup>90</sup>Sr, <sup>99</sup>Tc, и <sup>129</sup>I. Сви ови радионуклиди могу до одговарајућег степена бити у корелацији са <sup>137</sup>Cs на већини нуклеарних реактора у методама карактеризације. На већини постројења, <sup>90</sup>Sr постоји у растворима првенствено као јон пре него честица, док на PWR реакторима ( реактори са водом под притиском) стронцијум може да се нађе и у нерастворљивој форми. Због овог разлога, scaling factor за <sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs може бити поуздан само у одређеним случајевима.

Сличан проблем се дешава и са <sup>99</sup>Tc у води реактора. Ипак, хемијско понашање овог радионуклида је комплексно и, због његове тенденције да ствара различита једињења као што је  $TcO_4^-$ , корелациони фактор може трпети различите девијације од просечне вредности.

У погледу <sup>129</sup>I, јод и цезијум имају сличне механизме којим су ослобођени из горива и сличне транспортне особине у реакторском систему, али нешто различито понашање у разним хемијским условима (нпр. цезијум је катјон, док је јод обично у анјонској форми). Такође, <sup>129</sup>I је обично присутан у концентрацијама које су блиске детекционим лимитима, и са тачке гледишта радијационе сигурности није толико важан

радионуклид, као у погледу складиштења радиоактивног отпада јер има дуг период полуживота.

# 3.5.3 Актиниди

Већина истраживања су показала да постоји одређена корелација између концентрације актинида и фисионог продукта  $\gamma$  емитера <sup>144</sup>Се. Ова корелација је углавном последица њихове снажне хемијске сличности, укључујући високу нерастворљивост. Ипак, мерење концентрације <sup>144</sup>Се може бити озбиљан проблем. Гама пикови церијума не могу се директно мерити, с обзиром да су маскирани у спектру гама линијама других снажних емитера, тако да би требало <sup>144</sup>Се радиохемијски изоловати. Због тога, радионуклиди као што су <sup>60</sup>Со и <sup>137</sup>Сѕ се чешће користе, са несигурностима претходно поменутим за фисионе продукте.

Корелације између концентрација различитих актинида су прилично тачне. Ове корелације зависе од времена озрачивања нуклеарног горива и других специфичних услова рада нуклеарног реактора. Према референци (English et al., 1994) одређивање активности актинида у односу на <sup>241</sup>Am је одржив и ефикасан поступак када се <sup>241</sup>Am одређује  $\gamma$  спектрометријски.

Тешко-мерљиви радионуклиди који се јављају у процесима карактеризације у оквиру нуклеарног постројења као и корелациони радионуклиди који се користе за формирање scaling factora дати су у табели 3.4 (IAEA, 2009а). Као што се види из табеле, радионуклиди се не разликују само по начину настанка него и по физичко-хемијским особинама. У пракси, број кључних расположивих радионуклида, посебно оних са дугим периодом полу-живота, је лимитаран на свега неколико као што су  $^{60}$ Co,  $^{137}$ Cs,  $^{144}$ Ce и  $^{125}$ Sb.

Радионуклид	Полу-живот	Емитовано зрачење	Порекло	Физичка/хемијски облик
Н-3	12.3 y	$\beta_{-}(E_{\rm max} = 18.6 \text{ keV})$	Li-6(n,а)H-2(n,ү) Фисија	Трицијумски гас и вода
C-14	5730 y	$\beta$ – ( $E_{\text{max}}$ = 156 keV)	C-13(n, $\gamma$ )N-14(n,p)O- 17(n, $\alpha$ )	Гас и неоргански угљеник/бикарбонат
Cl-36	$3.01 \times 10^5  \text{y}$	$\beta$ - ( $E_{max}$ = 708.6 keV)	Cl-35(n,γ)	Растворњив,анјонски
Ca-41	$1.03\times 10^5y$	e-(2.97 keV)X (3.31 keV)X (3.59 keV)	Ca-40(n,γ)	Растворњив,анјонски
Fe-55	2.74 у	X (5.90 keV)X (6.49 keV)	Fe-54(n,y)	Углавном нерастворљив
Ni-59	$7.6 \times 10^4  \mathrm{y}$	X (6.93 keV)X (7.65 keV)	Ni-58(n,γ)	Углавном нерастворљив
Co-60	5.27 y	γ (1173.2 keV)γ (1332.5 keV)	Co-59(n,γ)	Углавном нерастворљив
Ni-63	100.1 y	$\beta$ -( $E_{max}$ = 66.9 keV)	Ni-62(n,γ)	Углавном нерастворљив
Se-79	$2.95 \times 10^5$ y	$\beta$ – ( $E_{\text{max}}$ = 151 keV)	Фисија FP активација: Se- 78(n,γ)	Растворњив,анјонски
Sr-90	28.9 y	$\beta$ -( $E_{\text{max}}$ = 546 keV)	Фисија	Веома растворљив, катјонски
Nb-94	$2.03\times 10^4y$	γ (702.6 keV)γ (871.1 keV)	Nb-93(n,γ)	Углавном нерастворљив
Тс-99	$2.11\times10^5\mathrm{y}$	$\beta_{-}(E_{\rm max} = 293.5 \text{ keV})$	Фисија Мо- 98(п,γ)Мо-99(b_)	Растворан(+7), анјонски нерастворљив (+4)
Ru-106	373.6 d	γ (511.9 keV)a γ (621.9 keV)a γ (1050.4 keV)a	Фисија	Растворљив,анјонски
Sb-125	2.76 у	γ (427.9 keV)γ (600.6 keV)γ (635.9 keV)	Фисија Sn- 124(n,γ)Sn-125(b-)	Растворљив,анјонски
I-129	$1.57 \times 10^7  \mathrm{y}$	X (29.8 keV)X (29.5 keV)X (33.6 keV)γ (39.6 keV)X (34.4 keV)	Фисија	Растворљив,анјонски
Cs-135	$2.3 \times 10^6  y$	$\beta - (E_{\text{max}} = 268.7 \text{ keV})$	Фисија	Веома растворљив, катјонски
Cs-137	30.08 y	γ (661.6 keV)	Фисија	Веома растворљив, катјонски
Ce-144	284.9 d	γ (133.5 keV) γ (696.5 keV) <sub>a</sub> γ (80.1 keV) γ (2185.7 keV) <sub>a</sub>	Фисија	Углавном нерастворљив

# Табела 3.4. Основне карактеристике произведених радионуклида на нуклеарним реакторима [NNDC, 2012] *а) Фисиони и активациони продукти*.

б	) A	Іктиниди	који могу	бити	одрећени	методом	scaling factora.
~ /	/		ju u u u u u u u u u u u u u u u u u u				~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~

Радионуклид	Полу-живот	Емитовано зрачење	Порекло	Физички/хемијски особине
U-235	$7.04 \times 10^8  y$	α (4.398 MeV)a (4.366 MeV)a (4.215 MeV)g (185.7 keV)g (143.8 keV)	Природно се јавља	Углавном нерастворљив
Np-237	$2.14\times 10^6\text{y}$	α (4.788 MeV)a (4.771 MeV)a (4.767 MeV)g (29.4 keV)g (86.5 keV)	U-235(n, γ) U- 236(n, γ)U-237(b-)	Углавном нерастворљив
U-238	$4.47\times 10^9 y$	α (4.198 MeV)a (4.151 MeV)	Природно се јавља	Углавном нерастворљив
Pu-238	87.7 y	α (5.499 MeV)a (5.456 MeV)	Np-237(n,γ) Np- 238(b-)Cm-242(α)	Углавном нерастворљив
Pu-239	24 110 у	α (5.157 MeV)a (5.144 MeV)a (5.106 MeV)	U-238(n,γ) U-239(b-) Np-239(b-)	Углавном нерастворљив
Pu-240	6561 y	α (5.168 MeV)a (5.124 MeV)	Вишеструк захват наутрона	Углавном нерастворљив
Pu-241	14.29 у	β-( <i>E</i> <sub>max</sub> = 20.78 keV)a (4.896 MeV)a (4.853 MeV)	Вишеструк захват наутрона	Углавном нерастворљив
Am-241	432.6 у	α (5.486 MeV)a (5.443 MeV)g (59.5 keV)g (26.3 keV)	Pu-241(b_)	Углавном нерастворљив
Pu-242	$3.75  imes 10^5  y$	α (4.902 MeV)a (4.858 MeV)	Вишеструк захват наутрона	Углавном нерастворљив
Cm-242	162.8 d	α (6.113 MeV)a (6.069 MeV)	Вишеструк захват наутрона праћен Am-242(b-)	Углавном нерастворљив
Cm-243	29.1 у	α (5.785 MeV)a (5.742 MeV)a (5.992 MeV)	Вишеструк захват наутрона	Углавном нерастворљив
Cm-244	18.1y	α (5.805 MeV)a (5.763 MeV)	Вишеструк захват наутрона	Углавном нерастворљив

# 3.6 Технике Monte Carlo симулација

Метод Monte Carlo (Bielajew, 2001) се широко користи за решавање проблема који укључују статистичке процесе и постао је веома популаран за моделовање пролаза честица кроз материјалну средину. Симулација пролаза честица - електрона, позитрона и фотона, заснива се на стохастичкој природи сударних процеса. Између два узастопна судара честица прелази случајан пут који је одређен тоталним макроскопским пресеком и густином расподеле. При сваком судару честица губи енергију, а губитак енергије се одређује из одговарајуће густине расподеле. После судара честица мења смер у односу на смер пре судара, а угао скретања је случајна величина која се бира из угаоне расподеле. На свом путу честица губи енергију до неке граничне енергије при којој се сматра да је честица апсорбована, или са неком енергијом напушта актуелни простор. Сви судари на путу честице припадају њеној историји. Понављањем великог броја историја добија се просторна и енергетска расподела честица у актуелном простору. Апсорбована енергија у датом простору мења особине супстанције, а настале промене утичу на пролаз честица наредних историја, јер се мењају температура и густина супстанције, а ако се дешавају и нуклеарне реакције, мења се и изотопски састав супстанције. Једноставан Monte Carlo алгоритам подразумева да су сви процеси математички описани, да су припремљене вероватноће прелаза честице из претходног у наредно стање фазног простора, да је припремљен ефикасан алгоритам случајног одабира тих вероватноћа, да се располаже брзим и поузданим моделом који описује сложени геометријски простор и, на крају, да употребљени рачунар има поуздан генератор псеудослучајних бројева. Кад су сви ти услови испуњени, могуће је алгоритам превести у рачунарски програм и приступити симулацији пролаза честица (Ilić, 1991).

Имплементација Monte Carlo кода захтева припрему улазног фајла који описује геометрију система у три димензије, материјале, повезану библиотеку пресека за интеракцију, локацију и карактеристике извора зрачења, тип резултата који се тражи и услове под којима се изводе калкулације. Нема принципијелних ограничења што се тиче облика извора или детектора или њихове геометријске поставке, иако, на пример цилиндрична симетрија знатно упрошћава израчунавање. Може се узети у обзир и транспорт фотона кроз околне материјале, колиматоре, на пример. Улазне информације неопходне за Monte Carlo поступак спадају:

- димензије извора и растојање од детектора,
- димензије кућишта детектора и осетљивих и неосетљивих зона детектора,
- елементарни састав и густина свих материјала кроз које пролазе фотони и честице,
- атенуациони коефицијент за фотоне за све материјале,
- пресеци за различите интеракције фотона у материјалу детектора у функцији енергије и угла расејања,
- информације о транспорту електрона и позиторна кроз материјал детектора.

Резултати Monte Carlo израчунавања слажу се са мереним вредностима за одговарајуће конфигурације у најбољем случају око ±5%. Несигурност експерименталних вредности је обично мања од ±5%, тако да се ове разлике морају приписати системаским грешкама или несигурностима израчунавања. Разлози се могу тражити у ограничењима

статистике. Друго сам реални детектор представља ограничење због тога што постоји приметне несигурности у облику и величини осетљиве запремине. Произвођачи детектора дају ове податке, али они нису често довољно тачни. Постоји и физичко ограничење, наиме, вероватноће интеракције и угаоне дистрибуције фотона и електрона. Међутим технике Monte Carlo су незамењиве у калибрацији детектора кад постоје ограничења везана за избор калибрационих извора као и у недеструктивним методама детекције зрачења. Ова израчунавања се могу корисно употребити за добијање релативних ефикасности зато што несигурности у интеракционим параметрима и геометријским улазним подацима имају мало утицаја на релативне вредности где ће доминирати статистичка несигурност Monte Carlo метода.

У овом раду коришћен је MCNP (Monte Carlo N-Particle Transport Code) интернационални стандрадни код за транспорт неутрона, фотона и електрона кроз материјалну средину. Поред експерименталне калибрације сва три детектора у овом раду су калибрисана и коришћењем Monte Carlo симулација и MCNP-5 кода и детаљан опис геометрије детектора, физике фотона и електрона као и њихових интеракција су дате у прилозима (Прилози А, Б, Ц, Е, Ф).

# 4 ОДРЕЂИВАЊЕ АКТИВНОСТИ <sup>90</sup>Sr У ВОДИ (ТЕШКОЈ/ОБИЧНОЈ) И ВАЗДУХУ

Развијена методологија одређивања активности тешко мерљивих радионуклида, чистих бета емитера, је настала у једној од фаза декомисије нуклеарног реактора "РА" у току припрема за препакивање и транспорт ислуженог нуклеарног горива у земљу порекла Русију (NTI, 2008). У току свакодневних активности, било је неопходно спектрометријски утврдити састав присутних радионуклида у води базена у којој је лежало ислужено нуклеарно гориво (45±5 год.) како би се установило порекло високе активности воде и предузеле мере за њено пречишћавање. У том циљу урађене су алфа, бета и гама спектрометријске анализе. Гама спектрометријске методе су указале на присуство фисионих продуката гама емитера и високоенергетских бета емитера. С обиром на тежину и комплексност бета спектрометријских метода био је изазов развити брзу, поуздану, недеструктивну, и с обзиром на њену свакодневну потребу, јефтину методу, која не генерише секундарни радиоактивни отпад, за разлику од стандардних метода које су дуготрајне и скупе. Развијена метода се базира на коришћењу полупроводничког Si детектора и Монте Карло симулација транспорта честица кроз материјалну средину (Grujić et al., 2011b). Тестирана је на примеру одређивања активности <sup>90</sup>Sr у води базена одлагалишта ислуженог нуклеарног горива и у ваздуху у просторији у којој се вршило препакивање горива. Служи за одређивање специфичне активности <sup>90</sup>Sr и других бета емитера опсегу 20 keV-2.2 MeV у води (обичној/тешкој) у затвореној посуди у опсегу активности 0.1Bq·ml<sup>-1</sup> – 0.1MBq·ml<sup>-1</sup>, ваздуху 0.1Bq·m<sup>-3</sup> – 1кВq·m<sup>-3</sup> и чврстим узорицима за испитивање активности <sup>90</sup>Sr, <sup>63</sup>Ni , <sup>99</sup>Tc, и других чистих бета емитера у опсегу 0.1Bq·g<sup>-1</sup> – 0.1MBq·g<sup>-1</sup>.

# 4.1 Особине <sup>90</sup>Sr

Стронцијум је мекан, сребрно-сиви земноалкални метал који представља смешу 4 природна стабилна изотопа <sup>84</sup>Sr, <sup>86</sup>Sr, <sup>87</sup>Sr и <sup>88</sup>Sr (са процентним уделом 0.56%, 9.86%, 7.0% и 82.58%, респективно) (KAERI, 2000) док до сада постоји 29 познатих нестабилних изотопа.

Стронцијум је релативно редак елемент (370 ppm), откривен у руднику олова близу Шкотског села Strontian у 18 веку (Murray, 1977). У природи се најчешће проналази у облику минерала: целестина SrSO<sub>4</sub> (стронцијумсулфата) и стронцијанита (стронцијум-карбоната).

### 4.1.1 Хемијске особине

Sr је лак метал који је, као и остали елементи Па групе, хемијски веома активан. Запаљен на ваздуху он енергично сагорева, бојећи пламен у црвенољубичасту боју: 2Sr +  $O_2 \rightarrow 2$ SrO, што се употребљава у аналитици, и у пиротехници за ракете за сигнализацију и осветљавање (тзв. "бенгалска ватра") (Steinhauser et al., 2009; Moreno et al., 2007; Ravindra, 2003; Steinhauser, 2008). Оксид стронцијума (SrO) је бела, врло тешко топљива материја, која лако реагује са водом градећи стронцијумхидроксид, Sr(OH)<sub>2</sub>. То је јака и у води добро растворљива база и употребљава се у индустрији шећера (Heriot, 2008). Остала једињења стронцијума слична су једињењима калцијума.

### 4.1.2 Физичке особине

Постоји 16 основних радиоактивних изотопа стронцијума али дуг полуживот, висока енергија распада и хемијско понашање у живим организмима изотоп <sup>90</sup>Sr сврстава у радионуклиде који су најтоксичнији за већину организама. Полуживоти свих других стронцијумових радионуклида су мањи од 65 дана. <sup>90</sup>Sr је чист бета емитер (546 кеV Емакс., 100% интезитет) са полуживотом од 28.79 година и специфичном активношћу од 5.1 ТВq/g (138 Ci/g), који се распада до изотопа <sup>90</sup>Y, који је такође чист  $\beta$  – емитер (2280 кеV Емакс., 100% интезитет) са полуживотом од 64.0 ч (NNDC, 2012). Продукт распада <sup>90</sup>Y је стабилни изотоп, <sup>90</sup>Zr. Када је полуживот "родитеља" много већи од полуживота "потомка" успоставља се радиоактивна равнотежа са потомком, што се у случају <sup>90</sup>Sr и <sup>90</sup>Y дешава после неколико недеља.

Значајне количине <sup>90</sup>Sr се производе у току процеса фисије <sup>235</sup>U и <sup>239</sup>Pu у нуклеарним реакторима, с тога се налази у већим количинама у ислуженом нуклеарном гориву као главни фисиони продукт, и у лабораторијама за производњу нуклеарног оружја. Принос овог радионуклида при фисији <sup>235</sup>U термалним неутронима је 5.77%, а при ирадијацији брзим неутронима 4.38%. Фисија брзим неутронима даје, у случају <sup>239</sup>Pu принос 2.23%, а у случају <sup>232</sup>Th чак 6.8% (Tykva et al., 2004).

### 4.1.3 Биолошке особине

Стронцијум може да се унесе у организам храном, водом или удисањем ваздуха. Гастроваскуларна абсорпција из хране и воде је основни извор унутрашње депозиције стронцијума код већине популације. Просечно 30-40% стронцијума унетог ингестијом се абсорбује крвотоком. Та количина се смањује са годинама, а највећа је (60%) код деце у њиховој првој години живота. С обзиром да је стронцијум хемијска замена за калцијум депонује се у костима и зубима одакле се врло тешко уклања (Acar and Acar, 2004) што резултује дугим биолошким животом од 49.3 год. (Goutelard et al. 2000; Acar and Acar, 2004). Инкорпоратиран у костима озрачује коштане ћелије, коштану срж, и потенцијално меко ткиво око костију, посебно лобању. Радиоактивни изотопи

стронцијума могу да проузрокују обољења, као резултат оштећења генетског материјала (ДНК) у ћелијама, углавном рак тироиде и леукемију (ATSDR, 2004).

# 4.1.4 Примена и распрострањеност

 $^{90}$ Sr се учестано користи као радиоактивни обележивач у медицини, у агрикултурним истраживањима као и у разним другим гранама индустрије. Енергија произведена распадом  $^{90}$ Sr се може претворити у струју коју производе мобилне електричне станице, које се најчешће користе за даљинска управљања, као што су навигациони светионици, метеоролошке станице и ванземаљске летелице (Doyle, 2008).  $^{90}$ Sr се такође користи у електронским цевима, као радиоактивни извор у инструментима за мерење дебљине узорака, и у медицини за третман очних болести. Контролисане количине  $^{90}$ Sr се такође користе у третманима рака костију, а познате су и неретке примене  $^{90}$ Y у медицини (Doyle, 2008).

<sup>90</sup>Sr, поред осталих изотопа, може се наћи у површинском земљишту као резултат атмосферских падавина после тестирања нуклеарних оружја. Глобално ослобађање стронцијума у атмосферу тестирањем нуклеарног оружја дало је укупну емисију од 622 PBq (UNSCEAR, 2000а). За време Чернобиља, реакторско језгро Unit 4 у време акцидента 26.04.1986. године је било контаминирано радионуклидом <sup>90</sup>Sr чија активност је била 200 PBq, од којих је 8-10 PBq ослобођено у атмосферу (UNSCEAR, 2000b). Садашње концентрације <sup>90</sup>Sr на површини земље типично се крећу од 0.01 до 1 pCi/g, и оне су одраз различитих метеоролошких услова, типа земљишта, надморске висине, са најчешћим концентрацијама између 0.05 и 0.5 pCi/g, тј. са 0.1 pCi/g као просечном вредношћу. <sup>90</sup>Sr је релативно мобилан и може да се креће са водом из дубљих слојева земље ка њеној површини. Његов транспорт у животној средини је строго условљен његовом хемијском формом.

Брзо одређивање активност стронцијума након његовог ослобађања у средину је веома важно јер се одређеним механизмима брзо транспортује из земље у биљке као што је рижа и пшеница (Choi et al. 2007; Gastberger et al. 2000; Yamaguchi et al. 2007) и самим тим улази у ланац исхране нпр. преко млека (Gastberger et al. 2001). С обзиром на његове хемијске и биолошке особине, и чињеницу да је изразити бета емитер, развијање методологије за одређивање активности овог радионуклида је увек праћено са великим интересом (Harvey,1989).

# 4.2 Стандардне методе за одређивање активности <sup>90</sup>Sr

Уобичајене аналитичке методе за одређивање активности <sup>90</sup>Sr се базирају на детекцији зрачења коришћењем течног сцинтилационог детектора или детекцији Черенковљевог зрачења. Масене спектрометријске методе играју значајну улогу у квалитативном и квантитативном одређивању радионуклида у узорку. Методе акцелераторске масене спектроскопије (AMC), термалне јонизационе спектроскопије (RIMS) и индуковано

спрегнуте плазма спектроскопије (ICP-MS) се често користе за детекцију  $^{90}$ Sr. Нарочито последња метода је широко распрострањена за детекцију овог радионуклида (Becker, 2005; Lariviere et al., 2006). За разлику од радиоаналитичких метода, масене спектроскопске методе не одређују радионуклиде на основу зрачења које емитују, него на основу формираних њихових јона у аналитичком процесу.

### 4.2.1 Течни сцинтилациони бројач

Метода са течним сцинтилационим бројачем (LSC) је стандардна метода за детекцију зрачења које емитују радионуклиди бета емитери. Принцип на којем се заснива ова метода је да се енергија бета честице претвара у видљиву светлост у течном сцинтилационом бројачу. Продукција светлости побољшава ce стављањем радиоактивног узорка у раствор познат као "коктел". Коктел садржи растварач и хемијско једињење које проузрокује светлосни бљесак у интеракцији са честицом. Његови молекули се директно или индиректно ексцитују јонизационим зрачењем из узорка, резултујући емисијом фотона. Фотони интерагују ca фотокатодом фотомултипликаторске цеви и стварају фотоелектроне. Интезитет емитованих фотоелектрона са фотокатоде који је директно пропорционалан интезитету јонизованог зрачења се конвертује у CPM's (count per minutes) на излазу бројача. Ефикасност детекције у идеалном случају се креће од 30% за трицијум, нискоенергетски бета емитер, до скоро 100% за <sup>32</sup>Р високо енергетски бета емитер (Feuerstein, 2007). За нека хемијска једињења и обојене узорке могу да се десе тзв. "гашења" и тај ефекат се урачунава у коначној обради података и делимично елиминише пажљивим припремањем узорка. За високоенергетске бета емитере, као што је  ${}^{32}$ P, узорци се могу анализирати у течном сцинтилационом бројачу и без коришћења коктела. Ова техника је позната као Черенковљево бројање и Черенковњево зрачење се директно детектује у фотомултипликаторској цеви (N.N., 2007). С обзиром да <sup>90</sup>Sr емитује бета честице са енергијама до 0.546 MeV, његов потомак  $^{90}$ Y емитује високоенергетске електроне (Emax = 2.2 MeV) што чини итријум много погоднији за детекцију после постизања радиоактивне равнотеже са  $^{90}$ Sr. МДА износи од око 0.07 Bql<sup>-1</sup> do 0.1 Bql<sup>-1</sup> што одговара  $0.02 \text{ pgl}^{-1.90}$ Sr (Alvarez et al., 1996; Shiraishi et al., 2006).

Ове матеоде захтевају претходну радиохемијску сепарацију <sup>90</sup>Sr од <sup>90</sup>Y. Радиохемијске методе које се могу наћи у литератури се углавном базирају на јоно-измени (ЕРА, 1979), течно-течној екстракцији (Kimura et al., 1979) и сукцесивној преципитацији стронцијум нитрата у азотној средини (HASL, 1977; Gómez et al., 1997). Велики број процедура је разрађено, тестирано и публиковано (Suomela, 1993; Torres, 2002; Fuks, 2006; Tarancón, 2002). У часопису Journal of the Radioanalytical and Nuclear Chemistry у периоду од 2000.-2004. године девет група научника је представило различите аналитичке методе (Fiskum, 2000; Froidevaux, et al. 2002; Heilgeist, 2000; Kumar et al., 2003; La Rosa, 2001; Lee, 2000; Mietelski, 2001; Paulenova, 2001; Rao, 2000; Shabana, et al., 2002; Vancaronura, et al., 2003). Свака од ових метода је комплексна и временски захтевна (≈48h) (Mateosa, 2000). У раду (Mateosa, 2000) је представљена полу-аутоматска процедура за радиохемијску сепарацију у трајању од 30 мин.

### 4.2.2 Бета сцинтилациони детектор- BetaScint<sup>TM</sup> Fiber-Optic Sensor

ВеtaScint детектор се најчешће користи у детекцији  $^{90}$ Sr и  $^{238}$ U (DOE, 1998). Систем се састоји од више-слојног бета сцинтилационог детектора са предњим прозором димензија  $30 \times 60$  сm. Сцинтилациона влакна су тракасто обликована и поређена вертикално. Бета честице које пролазе кроз предњи прозор детектора побуђују електроне у два танка слоја (1 mm) сцинтилатора и једног слоја пластичног сцинтилатора дебљине 0.5 mm, што резултује у емисији светлосног импулса, који се региструје у фотомултипликаторској цеви.



Слика 4.1 Вертикални пресек сензора за детекцију <sup>90</sup>Sr.

Фон се елиминише на тај начин што се броје само они догађаји који производе сцинтилације у сва три доња слоја сцинтилационих влакана али не и у горњем антикоицидентном слоју изнад абсорбујућег слоја. На овај начин се елиминише космичко зрачење које производи сцинтилације у свим слојевима (осим апсорпционом), и бета честице ниских енергија које не производе сцинтилације у сва три доња слоја. Ова метода детекције <sup>90</sup>Sr је била примењена у процесу карактеризације Brookhaven графитног истраживачког реактора (DOE, 1998) у циљу карактеризације земљишта и ремедијације терена. Узорке земљишта претходно треба припремити тј. одстранити органске материје и стене. Метода је једноставна, јефтина, није временски захтевна и не генерише секундарни отпад.

### 4.2.3 Масена спектрометрија

Масена спектрометрија се базира на мерењу тежине тежег дела атома елемената који се анализирају у узорку, односно базирају се на мерењу јона. Како би се јони раздвојили по физичком својству (однос масе и наелектрисања) у узорку, припремљени узорак (био он у течном или гасовитом стању) се првенствено јонизује. Јони пролазе кроз масени спектрограф који мери њихов однос масе и наелектрисања, на основу чега он потом разврстава јоне, тако да се као резултат добија распон вредности познат као масени спектар. Управо на основу овог масеног спектра може се уочити које вредности односа масе и наелектрисања су постојале у узорку, односно који се то елементи и у којој количини налази у испитиваном узорку.

### 4.2.3.1 Акцелераторска масена спектроскопија

Разлика између акцелераторске масене спектроскопије и других масених спектроскопских метода је у томе што се јони убрзавају до изузетно високих кинетичких енергија пре масене анализе. Узорак се стави у јоно-распршивачки извор и јонизује се бомбардовањем јонима Cs. У добро фокусираном снопу, брзи јони се раздвајају по енергијама у електростатичком пољу. У циљу детекције различитих изотопа квази-симултано, пулсирајући висок напон се прикључи на изоловану вакуумску комору магнета.

У терминалу акцелератора, јони се сударају са веома танком угљеном фолијом и сви јони су разбијени у наелектрисана стања већа од 2+. Након тога јони се убразавају у доњем делу акцелератора до енергија од 25 MeV. Затим се јони селектују по наелектрисању и фокусирају на гасни јонизциони детектор. Јонизујући гас јони депонују своју кинетичку енергију. Paul (Paul et al., 1997) је идентификавао јоне <sup>90</sup>Sr раздвајајући их од <sup>90</sup>Zr, што је врло захтеван задатак за овако тешке нуклиде, с обзиром да се енергетски губици ова два елемента разликују само 3-4%.

### 4.2.3.2 Термална јонизациона масена спектроскопија

Ова метода има широку примену у прецизном мерењу изотопа тешких елемената, као што су олово и стронцијум, иако захтева компликовану припрему узорка. Узорак се прво претвара у течност, након чега би се издвајали елементи потребни за даљу анализу и пречишћавали, након чега се прелази на мерење масеним спектрометром. Поред компликоване припреме узорака, метод је веома скуп и анализе захтевају доста времена, па се тако избегава употреба ове методе.

### 4.2.3.3 Индуковано спрегнута масена спектрометрија

Код индуковано спрегнуте спектроскопије, енергија неопходна за интеракцију добија се помоћу електричне струје коју изазива електромагнетна индукција, односно променљиво магнетно поље. Узорак је обично у течном стању, које се доводи у стање финог аеросола који се може јонизовати електричним пражњењем у гасу које ствара плазму. Плазма се ставља у горионик, у коме се налази неколико концентричних цеви направљених од кварца. Овај горионик ставља се у средину где постоји електрична струја, а онда се помоћу пламена аргона убацује варница која покреће јоне. Аргон пролази кроз цеви и долази у интеракцију са променљивим магнетним пољем (Thomas R., 2001). Реакција изазива отпуштање електрона узорка, који улазе у интеракцију са аргоном. На овај начин, стварају се јони који се потом одводе до масеног спектрометра.

Масени спектрометар, као и код других метода овог типа, мери присуство елемената и његову количину у узорку.

Ова метода се може користити и са ласером. Ласерска индукована масена спектрометрија нарочито је популарна последњих година, због тога што је за њу потребна знатно мања количина узорка. Уређај за ласерско одстрањивање има задатак да са узорка "исече" делић ширине око 200 микрона, и пошаље га у ICP уређај. На овај начин смањује се деструктивност методе, будући да је потребан веома мали део узорка за анализу. Мана ове методе јесте што је у односу на класичан ICP-MS прецизност нешто смањена (Тукоt, 2004). Метода је такође погодна за анализу широког спектра елемената, чак и ако се они у узорку налазе у траговима.

### 4.2.4 Компарација метода

Методе засноване на пропорционалном бројачу имају вредности за МДА око 0.07 Bql<sup>-1</sup> до 0.1 Bql<sup>-1</sup>(Alvarez et al., 1996, Shiraishi et al., 2006). Метода са течним сцинтилационим бројачем се углавном користи за узорке контаминиране бета и гама емитерима [Lazarea et al., 2009], и према Tarancón (Tarancón, et al., 2002) она је боља од методе која користи пластични сцинтилациони бројач или методе базиране на Черенковљевом зрачењу. Међутим овај поступак је дуготрајан (Herranz et al., 2001) поготово у случају нуклеарних акцидената када је веома важно да се у кратком временском року одреди ниво контаминације. После Чернобиљског акцедента било је потребно неколико недеља док се нису појавили први резултати активности <sup>90</sup>Sr. Отуда је развијање брзих метода детекције <sup>90</sup>Sr постало изазов. У основи, техника масене спектроскопије има добар потенцијал за брзо одређивање дуго-живећих радионуклида и игра веома важну улогу у мониторингу радионуклида у животној средини у комбинацији са аналитичким техникама (Becker, 2005). Примена масене спектроскопије за одрећивање реалативно малог садржаја  $^{90}$ Sr у узорцима је лимитирана услед приближно исте масе  $^{90}$ Sr и  $^{90}$ Zr и појаве репа пика који потиче од стабилног<sup>88</sup>Sr. Изотопи Sr и Zr у узорцима из животне средине су обично 6 до 9 редова величине заступљенији од  $^{90}$ Sr. AMC и TJMS пружају високу селективност елемената и изотопа и због тога су погодни за одређивање стронцијума са детекционим лимитом до 2 mBq по узорку (Wendt et al. 2000). Међутим ове методе су мање доступне од ICP-MS. Разлог се може наћи и високо технолошкој комплексности AMC и TJMS метода. ICP-MS пружа одличну осетљивост и тачност и брзу анализу изотопа на нивоу врло ниских концентрација на граници детекције за различите врсте узорака (Becker, 2005). Недостатак ове методе је ограничена масена осетљивост и масена интерференција која утиче квантитативну анализу (Nelms, 2005) и релативно висока цена анализе. Поред тешкоћа везаних за радиохемијску анализу, и компликоване припреме узорка за масену спектроскпију, и цене, изложеност радиоактивном зрачењу је такође један од значајних фактора који утиче на избор методе (Chien, 1996).

# 4.3 МСЛР геометријски модел полупроводничког Si детектора

Срж развијене методе за одређивање активности тешко-мерљивих радионуклида представља добро направљен геометријски модел детектора. Спецификација конфигурације детектора дата од стране произвођача често није довољна за модел, што неизоставно води ка додатним неопходним проценама. PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) Si детектор се у суштини састоји од полупроводничког Si кристала, алуминијумског држача и челичног кућишта које штити детектор од прашине и околног припродног зрачења (слика 4.2).



Слика 4.2 Систем PIPS детектора.

Упрошћена геометрија полупроводничког Si детектора за Monte Carlo симулације функције одзива за бета честице између 20 keV и 2.2 MeV је приказана на слици 4.3. Према каталогу произвођача Canberra (Canberra, 2010), радијус и дебљина испражњене области кристала Si, која представља активни део PD450-15-500AM PIPS, су 1.197 ст и 502 µm, респективно, док је дебљина предњег прозора од алуминијума (Al) 0.02 µm. Као што се може видети на слици 4.3 (димензије нису пропорционалне), активни део кристала Si је окружен са два "мртва" слоја. Дебљина мртвог слоја и конектора (омског контакта) није могла бити одређена екпериментално. С обзиром да су две димензије биле непознате, одлучено је да се за дебљину хоризонталног мртвог слоја узме вредност од 0.05 µm, док се вредност дебљине омског контакта проценила на основу MCNP-5 симулација. После серије Monte Carlo симулација, користећи стандарни извор  $^{90}$ Sr/ $^{90}$ Y, најбоље слагање екперименталне и нумеричке функције одзива добијено је за

конектор од злата (Ag) дебљине 20 µm. Поред злата материјали који су још били испитивани користећи MCNP-5 симулације су бакар и алуминијум у интервалу дебљине 20–100 µm.



Слика 4.3 Вертикални пресек PIPS детектора.

Нумеричке симулације су показале занемарљив утицај дебљине спољашњих мртвих слојева (слика 4.3) на функцију одзива детектора, тако да је усвојена вредност од 500 µm са обе стране кристала. Димензије осталих делова Canberra детектора, као што је алуминијумски држач и челично кућиште су екпериментално одређене.

PD450-15-500AM PIPS детектор је инсталиран у челично кућиште Canberra, модел 7400A (слика 4.4), и повезан са претпојачавачем Canberra модел 2004DM и вишеканалним анализатором GBS модел MCA166 (512 канала) са софтвером WinSpecI. Бета спектри нису мерени у вакууму, тако да је интеракција бета честица са честицама ваздуха симулирана MCNP-5 кодом (Слика 4.5). Постоље за узорак је покретно по вертикалној оси, чиме се постиже промена растојања узорка од детектора. Положај узорка по хоризонталној оси се подешава померањем на самом постољу. Иза постоља је постављен лењир којим се проверава положај постоља у односу на нулту тачку.

MCNP геометријски модел детектора приказан на слици 4.5 је коришћен за симулирање функције одзива детектора за бета честице. У MCNP коду (Прилог A) tally "F8 type" је коришћен за добијање енергетске дистрибуције бета честица за исте оне изворе који су коришћени у екперименталној калибрацији. Поред оптимизираних геометријских параметара детектора, основу модела представља и добро испитана зависност резолуције детектора од енергије.

У том циљу испитивана је зависност ширине линије  $\Delta E$  на половини висине (FWHM) од енергије за разичите изворе зрачења. У самом MCNP коду опција GEB омогућава симулацију резолуције. Мерења су показала да су вредности FWHM нешто мање на нижим енергијама односно нешто веће на вишим енергијама тј. крећу се у опсегу 9-13 keV. Та зависност је у првом реду била укључена у MCNP модел али није показала значајнији утицај. Тако да је за FWHM узета константна вредност од 11 keV на целом опсегу енергија бета честица од интереса, која је свакако била и препоручена од стране произвођача, а показала се као типична вредност за линију конверзионих електрона <sup>137m</sup>Ba.



Слика 4.4 Комора за постављање узорака са претпојачавачем.



Слика 4.5 Вертикални пресек MCNP геометријског модела PD450-15-500AM.

# 4.4 Калибрација PIPS детектора

Енергетска калибрација PD450-15–500AM детектора (остварена функцијом везе између енергије бета зрачења и канала) је постигнута коришћењем три отворена стандардна извора:  $^{109}$ Cd (88.03 keV),  $^{137m}$ Ba (624.22 keV) и  $^{207}$ Bi (481.69, 975.65 и 1682.22 keV).



Слика 4.6 Зависност енергије бета зрачења од редног броја канала.

За калибрацију PIPS детектора обезбеђене су две врсте одређивања функције одзива детектора: експериментална помоћу стандардних извора познате активности и нумеричка калибрација. Експериментална калибрација детектора урађена је коришћењем три стандардна извора: <sup>36</sup>Cl, <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y. Добијена функција одзива упоређена је са нумерички добијеном функцијом одзива чиме је геометријски модел потврђен и верификован. Два извора <sup>36</sup>Cl и <sup>137</sup>Cs су површинска у облику диска, а трећи је цилиндрични прекривен танким слојем алуминијума, познате емисије бета честица у 2  $\pi$  геометрији.

Улазне вредности у MCNP-5 моделу за енергије бета честица преузете су од Eckerman-а (Eckerman et al., 1994), осим за високоенергетски део спектра  $^{137}$ Cs за који су урађене корекције користећи вредности предложене од стране Kolobascin-a (Browne et al., 2007). Наиме, поређењем експерименталног спектра  $^{137}$ Cs са нумеричким утрврђено је не слагање за енергије бета честица по Eckerman-у које су веће од 650 keV (Слика 4.7), тако да су вредности за енергије бета честице изнад 650 keV преузете од Kolobascin-a, чиме се постигло много боље слагање у целом опсегу енергија. Да би се постигао задовољавајући ниво несигурности за сваку MCNP симулацију коришћено је  $2 \cdot 10^9$  историја.



Слика 4.7 Симулиран спектар  $^{137}$ Cs.

Симулирана функција одзива детектора за извор <sup>137</sup>Cs представља суму три различита доприноса: бета честица <sup>137</sup>Cs, конверзионих електрона <sup>137m</sup>Ba (624.22 и 655.67 keV са приносом од 7.43% и 1.34%, респективно) и гама зрачења <sup>137m</sup>Ba (661.66 keV са приносом од 85.21%). Ова три доприноса у укупном спектру <sup>137</sup>Cs су представљена посебно на слици 4.8. Слика 4.9 представља симулацију спектра <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y, и укључује допринос емисије бета честица <sup>90</sup>Sr и <sup>90</sup>Y (Прилог А). Односно, у МСNP програму, посебно је симулиран спектар <sup>90</sup>Sr, а посебно <sup>90</sup>Y, они су потом сумирани. На овај начин постигнута је мања несигурност симулације. Резултати калибрације функције одзива PIPS детектора за стандардне изворе зрачења <sup>36</sup>Cl, <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y, добијени експериментално и помоћу описаних нумеричких калибрација су приказани на сликама 4.11, 4.12 и 4.13.



Слика 4.8 Спектар <sup>137</sup>Сs са доприносима бета честица<sup>137</sup>Сs , електрона <sup>137m</sup>Ва и гама  $^{137m}$ Ва.



Слика 4.9 Спектар  ${}^{90}$ Sr/ ${}^{90}$ Y са доприносима бета честица  ${}^{90}$ Sr и  ${}^{90}$ Y.



Слика 4.10 Поређење експерименталног и нумерички добијеног спектра <sup>36</sup>Cl.



Слика 4.11 Поређење експерименталног и нумерички добијеног спектра <sup>137</sup>Сs.


Слика 4.12 Поређење експерименталног и нумерички добијеног спектра <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y.

Поређењем нумеричких и експерименталних резултата добијене су мале релативне разлике (мање од ±1%) по сваком каналу, док се те разлике сумирајући по свим каналима крећу до ±10 %. Конкретно, за спектар <sup>36</sup>Cl релативна разлика износи +7.97 %, за <sup>137</sup>Cs (-7.76 %), док за <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y (-2.03 %). Примећује се, да за спектар <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y она има најнижу вредност, иако се он протеже у најширем опсегу енергија. То је последица што за ниже вредности енергија експериментално добијен спектар је нешто изнад нумеричког, док је за више енергије обрнут случај тј. нумерички добијене вредности су изнад измерених. У коначном то резулутује малом релативном разликом између нумеричког и експерименталног спектра. У циљу смањења ових релативних разлика вршена су детаљна испитивања МСNP модела детектора, што је подразумевало: зависност FWHM од енергије, варијацију дебљине "мртвог слоја", итд. Међутим, с обзиром да то није резултирало значајнијим побољшањем, закључено је да су ове разлике можда последица степенасте дистрибуције улазних вредности енергија електрона предложених од стране Eckerman-а.

# 4.5 Припрема узорка

Узорак воде запремине од 3 до 6 ml се сипа у стандардну *Petri* шољу слика 4.13 и прекрије танком фолијом како услед испарења не би дошло до прљања главе детектора.



Слика 4.13 Стандардна посуда за анализу узорака.

Вода из базена одлагалишта (или тешка вода) се узима специјалном посудом која је намењена у те сврхе, а потом се пипетом са клипом или пумпицом сипа у *Petri* шољу.



Слика 4.14 Фотографија детектора, посуде са водом (узорка) и пинцете којом се узорак ставља на алумијумски држач.

#### 4.6 Примена модела за узорке са чистим бета емитерима

Развијена методологија се базира на примени MCNP модела PIPS детектора у недеструктивном методу одређивања активности бета емитера у узорку познате геометрије и атомског састава. Број радуонуклида у узорку може бити произвољан, међутим метода захтева претходно анализирање и идентификацију присутних радионуклида у узорку.

Први корак је мерење енергетског спектра бета зрачења из узорка; његов облик утиче на следеће кораке. Уколико се у спектру појаве бета честице високих енергија, неизоставан корак је X и алфа спектрометрија, да би се утрврдило да ли су високоенергетске бета честице последица распада  $^{238}U/^{234}$ Ра. Ако X и алфа спектрометрија потврде да у узорку нема  $^{238}U/^{234}$ Ра, високоенергетско бета зрачење се приписује  $^{90}$ Y који је природно повезан са  $^{90}$ Sr, узимајући у обзир да је узорак из базена ислуженог нуклеарног горива и утицај околине. У супротном, ако би се потврдило постојање  $^{238}U/^{234}$ Ра, постоји још једна активност коју треба одредити.

Проблем одређивања активности *N* радионуклида у узорку може се описати следећом формулом:

$$\sum_{n=1}^{N} A_n R_{n,i} = C_i, \ i = i_L, i_U$$
(4.1)

где је

*A<sub>n</sub>* – је непозната активност *n* –тог радионуклида у узорку [Bq];

*N* – је број радионуклида са непознатом активношћу у узорку;

 $R_{n,i}$  – је нумерички добијена функција одзива за радионуклид *n* у каналу *i*, користећи Monte Carlo симулације и MCNP-5 код. Функција одзива је амплитудска расподела за дату јединичну активност [1Bq] *n*-тог нуклида за дату конфигурацију детектора и узорка [Bq<sup>-1</sup>];

 $C_i$  – је експериментално добијена вредност амплитудске расподеле за одговарајућу конфигурацију детектора; и

 $i_L, i_U$  – доња и горња вредност канала (*threshold*) вишеканалног анализатора у одговарајућој конфигурацији.

Непознате активности  $A_n$  се добијају као решење система једначина дате једначином (4.1). Систем једначина, дат са (4.1), решава се нумерички *LSI* методом најмањих квадрата са ограниченим решењима да активности морају бити веће од нуле ( $A_n > 0$ ) (Прилог Д).

#### 4.7 Резултати

#### 4.7.1 Одређивање активности <sup>90</sup>Sr у води

У складу са већ описаном процедуром, гама емитери у води која је узета из базена ислуженог нуклеарног горива истраживачког реактора "РА" су идентификовани коришћењем полуроводничког Ge детектора GX5020. Детектор је нумерички калибрисан коришћењем калибрационог софтвера LabSOCS (LabSOCS, 2002) и MCNP-5 кода (Steljić et al., 2008) који омогућавају брзу и поуздану калибрацију за различите правилне геометрије извора у опсегу енергија гама зрачења од 50 keV до 2 MeV. Анализа гама спектра узорка воде је показала да узорак садржи <sup>137</sup>Сѕ и неке друге фисионе продукте или актиниде, високоенергетске бета емитере, чије зрачење проузрокује карактеристично закочно зрачење (bremsstrahlung) у кристалу Ge. Алфа спектрометријске анализе сувог остатка воде узетог из базена одлагалишта ислуженог горива су показале да не постоји присуство актинида <sup>238</sup>U/<sup>234</sup>Pa. Постојање радионуклида емитера високоенергетских бета честица у узорку воде је потврђено полупроводничким Si детектором PD450-15-500AM (слика 4.16). Такође анализирањем бета спектара (слика 4.15) могућих фисионих и активационих продуката као и актинида насталих на нуклеарном реактору "РА", узимајући у обзир време одлежавања горива, енергију зрачења и историју озрачивања, закључено је да високо-енергетске бета честице потичу од распада  ${}^{90}$ Sr/ ${}^{90}$ Y.



Слика 4.15 Бета спектри анализираних фисионих продуката и актинида.

Узорак воде је припремљен по већ описаној процедури. У циљу одређивања активности <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr у узорку воде, урађено је пет различитих прорачуна користећи MCNP-5 код.



Слика 4.15 Спектар узорка воде добијен PIPS детектором.

Три прорачуна се односе на један распад <sup>137</sup>Cs при којем се емитује бета честица, коју прати распад <sup>137m</sup>Ba, емисија гама зрачења (661.7 keV) и емисија конверзионих електрона (624.2 и 655.7 keV) (Прилог Б). Друга два прорачуна су повезана са распадом <sup>90</sup>Sr којег прати распад <sup>90</sup>Y. Одвојени прорачуни су урађени у циљу постизања задовољавајуће статистичке несигурности у МСNP симулацијама. Резултати су сумирани и добијене су две функције одзива детектора које се односе на један распад у секунди <sup>137</sup>Cs и један распад <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y. Геометријски МСNP модел PIPS детектора коришћен за моделовање узорка воде приказан је на слици 4.17.



Слика 4.17 Геометријски МСПР модел екперимента.



Слика 4.18 Поређење експерименталног и симулираног спектра узорка воде, и симулирани спектри удела радионуклида <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr у спектру воде.

На основу нумерички добијене функције одзива за активност од 1Вq радионуклида  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr/ $^{90}$ Y и експериментално добијеног спектра узорка 3 ml воде добијеног PIPS детектором (слика 4.18), систем од 511 једначина (јед. 4.1) је решен коришћењем метода Lawson–Hanson-a (Lawson, 1974), са ограниченим решењима да активности радионуклида морају бити веће од нуле (Прилог Д). Стартовањем програма од корисника се очекује да унесе вредности доњег и горњег канала као и број (N) радионуклида чије активности је потребно одредити. На основу експерименталног спектра узорка воде и нумерички добијених функција одзива за јединичне активности испитиваних радионуклида, које су улазне величине програма, добијене су следеће активности:

$$A(^{137}Cs) = 166.3 \pm 3.4 \quad \frac{Bq}{cm^3} \tag{4.2}$$

$$A(^{90}Sr) = 15.6 \pm 0.7 \quad \frac{Bq}{cm^3} \tag{4.3}$$

Активности <sup>137</sup>Сs је одређена и гама спектрометријским, мерењем на GX5020 Ge детектору на основу формуле:

$$A_{i,E} = \frac{C_{i,E}/t}{Y_{i,E}\,\varepsilon(E)} \tag{4.4}$$

где је  $A_i$ -активност радионуклида "*i*" за енергију *E*,  $C_i$ -укупан број импулса испод пика енергије *E* (ROI) генерисаних за време *t*,  $Y_i$  –вероватноћа емисије гама фотона енергије *E*,  $\varepsilon(E)$ -ефикасност детектора за енергију *E*. За линију 661.7 keV, активност <sup>137</sup>Cs у 6 g воде износи:

$$A(^{137}Cs) = 179.87 \pm 0.5 \quad \frac{Bq}{cm^3}.$$
(4.5)

Поређењем вредности за активност  $^{137}$ Cs добијене гама и бета спектрометријском методом уочава се добро слагање, што наводи на закључак да се одређена активност  $^{90}$ Sr у узорку воде може сматрати реалном, што доказује и график 4.17.

Решења су такође тестирана у зависности од вредности доњег и горњег канала, а у сагласности са врстом радионуклида који се разматрају, и показала су се као стабилна (табела 4.1).

Доњи канал	Горњи канал	$A(^{137}Cs)\left[\frac{Bq}{cm^3}\right]$	$A(^{90}Sr)\left[\frac{Bq}{cm^3}\right]$		
15	512	172.7479	13.9700		
15	500	172.7479	13.9700		
15	450	172.7479	13.9700		
15	400	172.74789	13.9700		
15	350	172.7476	13.9700		
15	300	172.7454	13.9706		
15	250	172.7411	13.9718		
15	200	172.80243	13.95337		
15	400	172.7479	13.9700		
20	400	173.3301	13.86438		
25	400	177.83263	13.050746		
30	30 400		11.8856137		

Табела 4.1 Тестирање програма у зависности од вредности доњег и горњег канала.

# 4.7.2 Одређивање активности <sup>90</sup>Sr у ваздуху

Друга примена MCNP геометријског модела PIPS детектора је за одређивање активности <sup>90</sup>Sr у ваздуху. Мерена је активност филтер папира (слика 4.19) са Thermo AMS-4 монитора за мерење алфа и бета активности у ваздуху, након 5 дана рада. Ради утврђивања присуства радионуклида гама емитера, филтер са монитора је мерен на полупроводничком Ge детектору GX5020. Гама спектар филтер папира приказан је на Слици 4.20. На спектру се уочава интезивна линија радионуклида <sup>137</sup>Cs (661.66 keV), и карактеристичне линије мањег интезитета <sup>60</sup>Co и <sup>241</sup>Am. Такође, може се уочити карактеристично закочно зрачење (bremsstahling) електрона високих енергија у кристалу Ge. Снимањем бета спектра овог филтера на PIPS детектору, и примењујући исту методологију за идентификацију радионуклида бета емитера, као и у случају узорка воде, установљено је на филтер папиру присуство <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y.



Слика 4.19 Филтер монитора Thermo AMS-4.



Слика 4.20 Гама спектар филтер папира монитира Thermo AMS-4.

Користећи полупроводнички Ge детектор GX5020 одређена је активност радионуклида  $^{137}$ Cs филтер папиру пречника  $\phi$  (r<sub>2</sub>):

$$A_{r2}(^{137}Cs) = 473.5 \pm 28.4 \ Bq.$$
 (4.6)

С обзиром на неуниформну расподелу радионуклида на филтер папиру, исечен је његов централни део тако да дијаметар (r<sub>1</sub>) одговара дијаметру PIPS детектора, претпстављајући да је на тај начин постигнута униформна расподела радионуклида на папиру. Измерена активност тог дела филтер папира са истим полупроводничким Ge детектором је била:

$$A_{rI}(^{137}Cs) = 175.0 \pm 10.5 \ Bq.$$
 (4.7)

Да би потврдили претпоставку да за централни део филтер папира радијуса г<sub>1</sub> можемо узети да је униформна расподела радионуклида, на основу добијених активности одређена је функција дистрибуције радионуклида на филтер папиру:

$$\int_{0}^{r_{1}} f(r) \, 2\pi r \, dr = A_{rl} \tag{4.8}$$

$$\int_{0}^{r_2} f(r) \ 2\pi r \ dr = A_{r_2},\tag{4.9}$$

где је  $r_1=1.2$  *ст* пречник централног дела филтер папира активности  $A_{r1}$ , док је  $r_2=2.05$  *ст* пречник целог филтер папира активности  $A_{r2}$ .

Претпостављајући да је функција f(r) облика  $f(r) = a + br^2$ , решавањем система:

$$\begin{bmatrix} \int_{0}^{r_{1}} f(r) 2\pi r \, dr & \int_{0}^{r_{1}} f(r) 2\pi r^{3} \, dr \\ \int_{0}^{r_{2}} f(r) 2\pi r \, dr & \int_{0}^{r_{2}} f(r) 2\pi r^{3} \, dr \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{rl} \\ A_{r2} \end{bmatrix}$$
(4.10)

добија се функција расподеле активности радионуклида у облику

$$f(r) = 40.165 - 2.047 r^2.$$
(4.11)

Ако се ова функција представи графички (слика 4.21), може се закључити да се активност исеченог дела филтер папира радијуса г<sub>1</sub> може сматратрати униформном, а исечен део филтер папира униформним извором зрачења у MCNP моделу.



Слика 4.21 Просторна расподела активности радиоуклида на филтер папиру.

На основу активности  $A_{r1}$  и  $A_{r2}$  радионуклида <sup>137</sup>Cs на филтер папиру добијен је *scaling factor*,

scaling factor 
$$= \frac{A_{r2}}{A_{r1}} = 2.7$$
 (4.8)

Претпостављајући да је просторна дистрибуција <sup>90</sup>Sr иста као и <sup>137</sup>Cs, одређивањем активности <sup>90</sup>Sr помоћу MCNP модела PIPS детектора (прилог Ц) на централном делу филтер папира и множењем са вредношћу *scaling factor*-а добија се активност <sup>90</sup>Sr на целом филтер папиру. Бета спектар централног дела филтер папира приказан је слици 4.22.



Слика 4.22 Бета спектар филтер папира монитора Thermo AMS-4.



Слика 4.23 Вертикални пресек MCNP модела PIPS детектора за добијање функције одзива филтер папира (Прилог Ц).

На слици 4.23 је приказан вертикални пресек MCNP геометрије PIPS детектора за добијање функције одзива филтер папира. На сличан начин, као и у претходном примеру непознате активности за <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr су добијене решавањем система једначина (јед.4.1) коришћењем метода Lawson–Hanson-а (Прилог Д) на основу симулиране функције одзива коришћењем MCNP-5 кода за јединичне активности радионуклида <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y (Прилог Ц) на филтер папиру и експериментално добијене функције одзива PIPS детектора за централни део филтер папира.



Слика 4.24 Поређење екпериментално и нумерички добијене функције одзива филтер папира и нумерички добијени удели радиониклида у укупном спектру.

Решавањем система 511 једначина, методом најмањих квадрата са ограниченим решењима да су активности радионуклида веће од нуле (прилог Д), добијени су следећи резултати активности радионуклида на филтер папиру:

$$A(^{137}Cs) = 164.37 \pm 13.1 \ Bq \tag{4.9}$$

$$A(^{90}Sr) = 23.0 \pm 1.0 \ Bq. \tag{4.10}$$

Поређењем резултата за активност <sup>137</sup>Cs на централном делу филтер папира добијеног коришћењем полупроводничког Si детектора и полупроводничког Ge детектора уочава се релативна разлика од 6%, што представља веома добар резултат, с обзиром да се ради о методама које се базирају на различитом типу зрачења.

На крају, знајући податак да укупна запремина ваздуха, која је прошла кроз AMS-4 ваздушни монитор у току пет дана, износи 146.7 m<sup>3</sup>, и користећи вредност scaling factor-а за добијање укупне активности радионуклида на филтер папиру, добијене су коначне активности радионуклида у ваздуху које износе:

$$A(^{137}Cs) = 3.00 \pm 0.25 \ \frac{Bq}{m^3}$$
(4.11)

$$A(^{137}Sr) = 0.30 \pm 0.03 \ \frac{Bq}{m^3}.$$
 (4.12)

На основу добијених активности нацртан је график приказан на слици 4.24 на којем је представљен експериментално добијен спектар филтер папира и нумерички, коришћењем MCNP симулација. Уочава се добро слагање, и на тај начин је још једном потврђена методологија одређивања активности тешко-мерљивих радионуклида.

Користећи презентовану методологију, активности <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr су свакодневно мерене у периоду децембар 2009.год–децембар 2010.год. у води базена одлагалишта и у ваздуху у просторији у којој је вршено препакивање горива. Резултати активности <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs у ваздуху у просторији у којој је вршено препакивање су приказани графички на слици 4.25 и 4.26, респективно.



Слика 4.25 Активност <sup>90</sup>Sr у ваздуху у просторији у току целог процеса препакивања ислуженог нуклеарног горива.



Слика 4.26 Активност <sup>137</sup>Cs у ваздуху у просторији у току целог процеса препакивања ислуженог нуклеарног горива (Grujić et al., 2011а).

# 5 ОДРЕЂИВАЊЕ УКУПНЕ ПОВРШИНСКЕ АКТИВНОСТИ НЕХОМОГЕНО КОНТАМИНИРАНИХ ПОВРШИНА β И γ ЕМИТЕРИМА

#### 5.1 Увод

Одрећивање површинских активности равних површина у процесу радиолошке карактеризације, представља круцијалан корак у планирању активности при декомисији нуклеарних реактора. Иако се у току рада нуклеарног реактора "РА" десио само један ицидент везан за оштећење горивног елемента, значајна количина радионуклида је генерисана у току дисперзије фисионих продуката и озраченог нуклеарног горива. Последица тога је контаминација површина и објеката у непосредној близини места за руковање и одлагање оштећеног горивног елемента радионуклидима који су бета и гама емитери. У циљу карактеризације тих површина развијена је методологија која се базира на директном мерењу површинских активности, GM пропорционалим детектором (HP210T сонда) и натријум-јодид (NaI) сцинтилационим детектором (Knoll, 2000). Укупна и/или скидљива површинска активност су радиолошки параметри који се углавном одређују стандардним методама мерења или лабораторијским анализама, као што је демонстрирано у радовима (Bracken et al., 1999; Hochel, 2000; Espartero et al., 1999). Један од критеријума који има значајну улогу у избору адекватног детектора и мерне процедуре је недовољно испитана осетљивост инструмента (MARSSIM, 2000). Abelquist и сар. (Abelquist et al., 1998) су спровели детаљно истраживање да би идентификовали и утврдили величине (активна површина детектора, емитована енергија зрачења из извора, геометрија извор-детектор) које утичу на ефикасност детектора у актуелним и реалним условима. У Интернационалном стандарду, ISO 7503-1 (ISO, 1988) мерење површинских активности се базира на формули која јасно прави разлику између ефикасности детектора и ефикасности извора. Стандард захтева да калибрациони извор поседује карактеристике које су сличне са карактеристикама актуелних површинских контаминаната у смислу енергије зрачења, ефеката расејања и самоапсорпције, геометрије, итд. Међутим, то у пракси није једноставно, али коришћењем одређених техника, као што је раздвајање ефикасности на две компоненте, могуће је на одређен начин урачунати реалне карактеристике самог извора. За ефикасности извора може се узети вредност на основу препорука ISO 7503-1 или постојеће емпиријске вредности дате у NUREG-у (Abelquist et al., 1998). С обзиром да ови подаци нису добијени за све могуће комбинације променљивих, развијен је метод који се базира на Monte Carlo симулацијама одзива ГМ сонде у различитим реалним условима. У циљу провере ове методе у таквим условима где су присутни снажни гама емитери, предложен је и други метод за мерење укупне површинске активности контаминираних површина радионуклидима који поред емисије бета зрачења емитују и ниско-енергетске фотоне или снажно гама зрачење, базиран на концепту покретног NaI детектора са колиматором (Giles et al., 2006). У овој тези предложена је примена обе методе у циљу добијања поузданих резултата мерења површинских активности (Grujić еt al.<sup>\*</sup>, рад је у процесу ревизије). С обзиром да се радионуклиди <sup>137</sup>Сѕ и <sup>60</sup>Со најчешће могу наћи у процесима карактеризације објеката и површина на нуклераним реакторима и врло једноставно се мере стандардним методама гама спектрометрије, погодни су за методу *scaling factora* за одређивање активности тешко мерљивих радионуклида. У раду (Hochel, 2000) аутор наводи да на нуклеарном реактору који је експлоатисан више деценија, без обзира на врсту коришћених горивних елемената, и снагу реактора, постоји релативно једноставна дистрибуција радионуклида. Она се углавном своди на доминацију пет до шест радионуклида, фисионих продуката и активационих елемената, у које спадају <sup>60</sup>Со, <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y, <sup>137</sup>Cs/<sup>137m</sup> Ва, и у неким случајевима <sup>3</sup>Н. На нуклеарном реактору "РА" у досадашњим карактеризацијама утврђено је да контаминација објеката и површина потиче управо услед поменутих првих пет радионуклида, тако да се развијена методологија може применити у случају контаминације површина бета емитерима код којих је максимална енергија бета честица већа од 0.15 MeV.

# 5.1.1 Цезијум-137 (<sup>137</sup>Сs)

Цезијум, као и цезијум-137, је мекан сребрно бело-сиви метал изразито мале густине са тачком топљења на релативно ниској температури од 28°C, што га сврстава у групу од пет метала који су течни на температурама блиским собној. Цезијум је алкални метал сличних физичких и хемијских особина рубидијуму и калијуму. Изразито је реактиван и запаљив, реагује са водом чак и на температурама од -116 °C.

Цезијум има 39 познатих изотопа, чији се масени бројеви крећу у интервалу од 112 до 151. Постоји само један стабилан изотоп <sup>133</sup>Cs, са 78 неутрона. Радиоактивни <sup>135</sup>Cs има веома дуго време полураспада око 2.3 милиона година, док <sup>137</sup>Cs и <sup>134</sup>Cs, имају периоде полураспада 30 и 2 год., распективно. <sup>137</sup>Cs се распада у краткоживећи <sup>137m</sup>Ba бета распадом (513.41 keV макс. 94.43%, интезитет), а затим <sup>137m</sup>В емисијом гама зрачења (661.66 keV са приносом од 85.21%) и конверзионих електрона (624.22 и 655.67 keV са приносом од 7.43% и 1.34%, респективно) са полупериодом од 2.6 мин. у стабилни  $^{137}$ Ba, док се  $^{134}$ Cs распада директно у  $^{134}$ Ba. Изотопи са масеним бројевима 129, 131, 132 и 136 имају полу-периоде између једног дана и две недеље, док већина осталих изотопа имају полупериоде од неколико секунди до неколико делова секунди. Изотоп <sup>135</sup>Сѕ је један од дуго-живећих фисионих продуката урана који настаје у нуклеарним реакторима. Међутим, принос овог фисионог продукта је смањен у већини реактора јер његов предходник, <sup>135</sup>Хе је изузетно моћан неутронски апсорбер и често трансмутира у стабилни  $^{136}$ Хе пре него што се распадне у  $^{135}$ Сs. Скоро сав цезијум који настаје у нуклеарној фисији добија се бета распадом фисионих продуката који имају значајан број неутрона и пролазе кроз различите форме изотопа јода и ксенона. Услед тога што су јод и ксенон испарљиви и могу дифузијом да пролазе кроз нуклеарно гориво или ваздух, радиоактивни цезијум се углавном формира даље од места фисије (Tykva et al., 2004).

<sup>137</sup>Cs са водом гради растворљиво једињење (цезијум-хидроксид) а његово биолошко понашање је слично калијуму и рубидијуму. Када се нађе у природи може да се

преноси и акумулира у различитим износима како у земљи тако и воденим екосистема. Вегатација, као главни фактор у ланцу исхране, акумулира <sup>137</sup>Сѕ у лишћу и земљи. Количина која се пренесе из земље у корен биљке може значајно да варира (UNSCEAR, 1977; Wiechen, 1972; Konshin, 1992ab). Трансфер овог радионуклида у хербиворе траје релативно кратко, док је за карниворе обрнут случај. Што се тиче људске исхране, највише се акумулира у млеку, месу, риби (UNSCEAR, 1977), у неким сортама шумских боровница (Berg et al., 1991) и печуркама (Grueter, 1971). Људско тело садржи око 1500 µg стабилног цезијума (ICRP 23, 1975). Дневни унос исхраном износи од 12 до 16 µg/d и у зависности од врсте хране абсорбује се чак 80-100%. Око 90% се излучује из организма кроз бубреге путем урина. Упркос овоме постоји циркулација Cs јона у гастроинтестиналном тракту са значајном реапсорпцијом. На основу испитивања такође је утврђено да се 80% цезијума депонује у мишићима док се 8% депонује у костима. Након једнократне апликације цезијума, 10% се излучује са биолошким полуживотом од 1 до 2 дана (UNSCEAR, 1977; 1982), а остатак са полуживотом од 50 до 200 дана. Постоје подаци у литератури да су те вредности за децу 15±5 дана а за одрасле 100±50 дана. Ацидентална ингестија <sup>137</sup>Сs може се третирати са "Prussian blue" кристалом за који се веже и тиме се убрзава његово избацивање из тела.

<sup>137</sup>Cs се ретко користи у пракси. У малим количинама користи се у калибрацији детектора за детекцију зрачења, док се у индустрији користи у инструментима за мерење протока флуида и дебљине материјала. Има примену у медицини у брахитерапији при третирању различитих типова рака (брахитерапија је постављање радиоактивног извора у сам тумор или у непосредну близину тумора).

#### **5.1.2** Кобалт-60 (<sup>60</sup>Со)

Нерадиоактивни кобалт је чврст, сребрно-бели метал који се у природи јавља у облику <sup>59</sup>Со као саставни део различитих минерала и дуго је био коришћен за добијање плаве боје керамике и стакла. Постоји девет главних радиоактивних изотопа кобалта, а међу њима само <sup>60</sup>Со и <sup>57</sup>Со имају полуживоте довољно дуге да би били забрињавајући. Полуживоти осталих изотопа су мањи од 80 дана. <sup>57</sup>Со се распада са полуживотом од 270 дана, електронским захватом, док се <sup>60</sup>Со распада са полуживотом од 5.3 године, емитујући бета честицу ( 317.861 keV Емах, 99.93% интезитет) и два високоенергетска гама зрака (1173,237 и 1332,501 keV са приносом 0.9997 и 0.999, респективно). Радиоактивни <sup>60</sup>Со се комерцијално производи у линеараним акцелераторима за коришћење у медицини и индустрији. Такође настаје као нуспродукт у експлотацији нуклеарних реактора, када су металне структуре, као што је челик изложене неутронском зрачењу тј. у процесима неутронске активације.

<sup>60</sup>Со има широку примену, и користи се за: стерилизацију медицинске опреме, као радиоактивни извор у радиотерапији, у индустријској радиографији, и озрачивању хране и крви, и у лабораторијске сврхе. Може се унети у организам храном, водом и ваздухом. Гастроинтестинална апсорпција из воде и хране је основни извор унутрашње

депозиције кобалта код већине популације, која се креће од 5 до 30% (Peterson et al., 2007). Кобалт је есенцијални елемент који се може наћи у већини ткива, али се у великој мери избацује из организма екскретима, док се мале кличине задржавају у јетри, бубрезима и костима, где услед зрачења могу да проузрокују рак.

## 5.2 НР210Т сонда за мерење површинске бета активности

GM сонда HP210T (слика 5.1) произвођача Thermo Scientific (TS, 2003а) је намењена за мерење бета активности са равних површина. Сонда користи GM јонизациони детектор запремине 17.7 cm<sup>3</sup> напуњен са инертним гасом неоном на притиску од 0.2 MPa, и има танак прозор од материјала MICA дебљине 6 µm (садржи оксиде силицијума, алуминијума: SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и других метала густине 2.883 g·cm<sup>-3</sup>). Ради спречавања оштећења, испред MICA прозора (активне површине од 15.5 cm<sup>2</sup>) је постављена танка челична мрежица. Високи напон и регистровање броја имплуса изазваних упадним бета и гама зрачењем се остварује помоћу инструмента E-600 (TS, 2003b). Сонда је оклопљена волфрамом дебљине око 7 mm ради смањења доприноса гама зрачења и намењена је мерењима у пољима са увећаном јачином дозе гама зрачења (у односу на природни фон).

За проверу исправности сонде HP210T и инструмента E-600, произвођач Thermo Scientific је предвидео посебан софтвер (TS, 1997). Овај софтвер омогућава сразмерно једноставно снимање одзива система сонда-уређај E-600 на бета зрачења из стандардног извора (обично <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y са активном површином која је блиска површини MICA прозора) у функцији од високог напона и избор оптималног високог напона. Оптимална вредност високог напона за ову сонду је између 650 V и 750 V.



Слика 5.1 Фотографија отворених извора бета зрачења, носача извора, сонде HP210T са колиматором од волфрама и уређаја Е-600.

# 5.3 Експериментална и нумеричка калибрација ефикасности сонде HP210T

# 5.3.1 Методологија одређивања ефикасности GM сонде за мерење површинских активности

У случајевима мерења површинских активности изражених као активност по јединици површине, генерисани импулси у сонди за одређено време се директно односе на зрачење емитовано са површине пре него на укупну активност на/или унутар површине. У складу са формулом (3.15) тотална ефикаснот се може раздвојити на ефикасност детектора  $\varepsilon_{I}$  (репрезентује карактеристику детектора и геометрију) и ефикасност извора  $\varepsilon_{s}$  (представља основне карактеристике самог извора), тј.

$$\varepsilon_{\text{tot}} = \varepsilon_{\text{I}} \cdot \varepsilon_{\text{s}}. \tag{5.1}$$

Тотална ефикасност  $\varepsilon_{tot}$  је комбинација карактеристика детектора, извора и геометрије. Теоријски, ефикасност детектора є не зависи само од максималне енергије зрачења бета честице већ и од енергетске дистрибуције емитованих честица и конструкције извора. Другим речима, два различита извора са истом брзином емисије бета честица у  $2\pi$ , али различитим енергетским спектром могу проузроковати различиту брзину бројања истог детектора. То је због тога што сопствена ефикасност детектора, I<sub>i</sub>, је у суштини енергетски зависна, а број честица који погађа активни прозор детектора у јединици времена може да варира услед апсорпције у ваздуху. Конкретно, ефикасност детектора, єї незнатно зависи и од конструкције самог извора и може бити веома осетљива и на мале разлике у геометријама у случају калибрације и актуелних мерења. Међутим, у већини случајева горе напоменути ефекти могу бити занемарени, а є се одређује користећи погодан стандардни извор. Ефикасност актуелне контаминиране површине,  $\varepsilon_s$ , је тешко проценити и може да се разликује и за ред величине у зависности од структурних разлика реалних извора. Препоручене вредности за ε<sub>s</sub> (ISO, када су у питању директна мерења површинских активност, су добијене 1988), узимајући у обзир да је извор представљен као танак слој бета емитујућих радионуклида прекривен са 2.5 mg/cm<sup>2</sup> неактивног материјала. У том случају ефекти самоапсорпције се могу занемарити ( $\varepsilon_s = 0.5$ ) за бета емитере код којих је  $E_{\beta_{Max}} \ge$ 0.4 Mev, док за бета емитере 0.15 MeV  $< E_{\beta max} < 0.4$  је средња вредност за  $\varepsilon_s$  око 0.25 за исте услове.

У циљу укључивања ових ефеката у директна мерења површинских контаминација, посебно у случају интерферујућих поља зрачења развијен је геометријски модел GM сонде за Monte Carlo симулације ефикасности детектора  $\varepsilon_I$  и ефикасности извора  $\varepsilon_s$ .

#### 5.3.2 Експериментална калибрација

Основно правило коришћења сонди HP210T за мерење површинских активности бета емитера захтева њихову експерименталну калибрацију пре почетка мерења и после обављеног мерења. Исте вредности за ефикасност детектора пре и после мерења су гаранција да је уређај добро радио у току мерења површинских активности. Да би осигурали да растојање између стандардног извора бета зрачења <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y и сонде HP210T буде једнако растојању између мерене површине и сонде израђен је посебан пластични носач извора (слика 5.1).

Експериментална калибрација је урађена мерењем одзива сонде постављене на пластични носач без извора бета зрачења у просторији у којој нема вештачких радионуклида, односно мерењем фона. Мерење фона се обавило 20 пута у току временског интервала Т који износи 60 s. На основу измерених вредности фона В:=[32,36,25,35,21,35,28,35,23,31,28,30,28,39,25,30,22,24,32,19] одређени су средња вредност фона и стандардна девијација мерења фона на основу израза:

$$\overline{C_B} = \frac{1}{20} \sum_{i=1}^{20} B_i = 28.9 \quad imp/min$$
(5.2)

$$SD_B = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{20} (B_i - \overline{B})^2}{20}} = 5.4 \ imp/min$$
 (5.3)

После мерења фона, у истој просторији, користећи исти носач извора обавило се мерење одзива сонде (за исти временски интервал Т) на отворени извор познате емисије бета честица у просторном углу 2  $\pi$  у јединици времена (S<sub>β</sub>). Коришћен је стандардни извор  $^{90}$ Sr/ $^{90}$ Y површине 13 cm<sup>2</sup> који обезбеђује бета честице у широком енергетском опсегу (до 2.2 MeV). За 5 вредности мерења одзива сонде за  $^{90}$ Sr/ $^{90}$ Y у току 60 s, S:=[45400,45500,45800,45700,46300], ефикасност сонде на основу израза (3.16) износи:

$$\varepsilon_{I} = \frac{\frac{1}{5} \sum_{i=1}^{5} (S_{i} - 28.9) imp/s}{1477.82 \frac{\beta}{2\pi \cdot s} \cdot 60} = 0.5385$$
(5.4)

Минимална детектабилна вредност површинске активности за дату сонду се према стандарду NUREG 1507 (Abelquist et al., 1998) одређује изразом:

$$MDA = \frac{3 + 4.65 SD_B}{\varepsilon_I \varepsilon_s T W}.$$
(5.5)

где је  $\varepsilon_s$ -ефикасност извора, *T*-време мерења, *W*-активна површина сонде. На основу претходног израза и вредности за  $\varepsilon_s$  предложене по NUREG 1507-у (израз 3.17), вредност МДА за сонду HP210T износи 0.11 Bq/cm<sup>2</sup>.

#### 5.3.3 Нумеричка калибрација ефикасности сонде НР210Т

Да би се омогућило што тачније одређивање производа параметара  $\varepsilon_I$  и  $\varepsilon_s$  у изразу (5.1) и да би техника мерења површинске активности сумирана изразом (3.15) могла да се користи у просторијама са увећаном јачином дозе гама зрачења, развијен је геометријски модел сонде за Monte Carlo програм MCNP-5 за потребу њене калибрације.

Већина параметара у геометријском моделу је позната из литературе (Steinmeyer, 2005) или је дата од стране произвођача (TS, 2003). Детаљна испитивања су урађена у циљу одређивања дебљине MICA прозора. По спецификацији произвођача она се креће у границама између 1.4 -  $2.0 \text{ mg/cm}^2$ . После серије нумеричких симулација користећи стандардне изворе зрачења, најбоље слагање са експериментално добијеним вредностима за ефикасност детектора је постигнуто за дебљину MICA прозора од 6 µm. Вертикални пресек геометријског модела сонде HP210T оклопљене са заштитом од волфрама са стандардним извором <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y на пластичном носачу је приказан на слици 5.2. На слици 5.3 је приказан хоризонтални пресек сонде (HP210T) који показује да је челична мрежица испред MICA прозора моделована реално (колико је било могуће) (прилог E).



Слика 5.2 Вертикални пресек геометријског модела сонде HP210T са стандардним извором <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y на пластичном носачу.



Слика 5.3 Хоризонтални пресек геометријског модела сонде HP210T оклопљене заштитом од волфрама на половини дебљине челичне мрежице.

Као пример валидације модела сонде HP210T, у табели 5.1 приказани су резултати за ефикасност сонде HP210T добијени мерењима за три отворена извора са бета емитерима и нумеричким симулацијама користећи MCNP-5 приказани геометријски модел и изотропну угаону диструбицију честица које излазе из површине извора (Прилог Е). У моделу је симулиран транспорт електрона и фотона, док је опцијом tally F8 добијен одзив детектора на упадне честице. На основу бројних нумеричких симулација, коришћењем стандардних извора, утврђена је непозната вредност за treshold сонде упоређивањем са екперименталним резултатима, док је резолуција детектора у моделу.укључена опцијом GEB (30 keV).

	F F J			
Поступак одређивања	Ефикасност ε <sub>I</sub>			
ефикасности $\varepsilon_{I}$	$^{90}$ Sr ( $\phi$ 4.06 cm)	<sup>90</sup> Sr (\u00f6 1.9 cm)	<sup>36</sup> Cs (\u00f6 1.9 cm)	
Мерења помоћу сонде НР210Т	$0.5251\pm 6.0\%$	$0.5933\pm 6.0\%$	$0.5680\pm6.0\%$	
Нумеричке симулације помоћу програма MCNP-5	$0.5192 \pm 6.0\%$	0.5677±6.0%	0.5301±6.0%	

Табела 5.1 Резулатати мерења и прорачуна ефикасности за сонду НР210Т.

Резултати приказани у табели 5.1 показују:

- a) да је разлика између резултата експериментално и нумерички добијене ефикасност детектора ε<sub>I</sub> за HP210T сонду за три извора различитих површина и енергетских спектара бета зрачења у опсегу мерне несигурности (тј. ±6%).
- b) да се вредност за ефикасност детектора мења у зависности од активне површине извора за исти радионуклид, и та промена је иста за вредности ефикасности добијене Monte Carlo симулацијама и експериментално (и мерена и нумерички добијена вредност за ефикасност се разликује за 10% услед промене активне површине извора од 12.9 cm<sup>2</sup> до 2.84cm<sup>2</sup>) и,
- с) промена вредности ефикасности детектора услед утицаја енергије бета честица за исти радијус активне површине извора, добијена Monte Carlo симулацијама и експериментално, је слична (мерења и прорачуни дају вредност промене ефикасности за -5% услед промене максималне енергије бета честица од 2.26 MeV до 0.71 MeV).

Експериментално верификован геометријски модел GM сонде је коришћен за евалуацију утицаја различитих фактора на одзив GM сонде. Између осталог, примењен је за одређивање ефективне површине прозора (*W*) GM сонде у случају мерења актуелне површинске контаминације за одређено растојање између сонде и контаминиране површине. На слици 5.4 приказана је зависност симуларине ефикасности сонде у зависности од радијуса контаминиране површине. На графику се јасно може уочити да ефикаснот сонде строго зависи од активне површине детектора односно да за одређене вредности  $\varepsilon_I$  може се узети да је  $\varepsilon_I W \sim const$ .



Слика 5.4 Зависност симулиране ефикасности детектора од радијуса контаминиране површине.

Вероватноћа детекције, дефинисана као однос одзива сонде на бета честице емитоване са површине одређеног радијуса и одзива сонде на бета честице емитоване са целе (коначне) контаминиране површине, је разматрана у зависности од радијуса контаминиране површине. Резултати Monte Carlo симулација представљени на графику (слика 5.5) показују да, за извор <sup>60</sup>Со на растојању 0.28 ст вероватноћа детекције достиже ниво поверења 0.95 за ефективну површину коришћене сонде од 20 ст<sup>2</sup>.



Слика 5.5 Зависност вероватноће детекције честица од радијуса контминиране површине.

Геометријски модел сонде је такође послужио за анализирање зависности броја честица, које напуштају површину извора у јединици времена, од ефеката расејања (у самом извору и од подлоге) и од ефеката самоапсорпције у извору. Резултати симулиране угаоне дистрибуције бета честица из танког слоја извора <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y без неактивног површинског слоја (представља ефекат расејања) и додатно прекривеног са  $2.5 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$  неактивног маријала (представља ефекат самоапсорпције) су представљени на слици 5.6. Као неактивни материјал, узет је суви остатак европске минералне воде (Birke, 2010). Добијени резултати показују да ефекат расејања повећава број честица које напуштају површину без значајне промене њихове угаоне дистрибуције, док ефекат самоапсорпције смањује број, померајући угаону дистрибуцију честица које напуштају површину према напред. Услед варијација особина расејања и апсорпције реалних површина, немогуће је претпоставити да постоји једноставна, позната релација између брзине емисије и активности. Ове потешкоће и могућности геометријског модела GM сонде да се урачунају ефекти самоапсорције и расејања реалних извора су биле разлог зашто је Monte Carlo техника коришћена за симулацију односа тоталне ефикасности и ефикасности детектора ( $\varepsilon_{tot}/\varepsilon_I$ ) пре него одређивања ефикасности извора  $\varepsilon_{s}$ .



Слика 5.5 Угаона дистрибуција бета честица које напуштају танак извор  ${}^{90}$ Sr/ ${}^{90}$ Y са подлогом од Plexiglas-а и површинским неактивним слојем дебљине 2.5 mg·cm<sup>-2</sup>.

# 5.4 Експериментална и нумеричка калибрација NaI (2 x 2'') детектора

NaI(Tl) 2×2" сцинтилацициони детектор типа M802 произвођача Canberra је коришћен за мерење површинске активности и детекцију гама радионуклида. Састоји се од кристала NaI димензија 5.08cm×5.08cm који је окружен рефлектором од MgO дебљине 0.185 cm у алуминијумском (Al) кућишту дебљине 0.05 cm (слика 5.6). Са задње стране кристала налази се слој SiO<sub>2</sub> дебљине 0.3 cm који представља светловод ка фотомултипликатору који је у моделу представљен као хомогена материја, густине 0.94g/cm<sup>3</sup>. Унутрашња структура детектора је позната из литературе (Tavakoli-Anbaran et al., 2009; Hu-Xia She et al., 2002; Fayez et al., 2006) и потврђена на основу радиографског снимка самог детектора (слика 5.7)



Слика 5.6 Унутрашња структура детектора (димензије у ст).



Слика 5.7 Радиографски снимак NaI(Tl) детектора.

Калибрација детектора NaI(Tl) урађена је на два начина, експериментално помоћу стандардних извора познате активности и коришћењем Monte Carlo симулација и програма MCNP-5. Могућности експерименталне калибрације детектора су ограничене на две геометрије: "тачкасту" помоћу стандардних извора (<sup>57</sup>Co, <sup>60</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>137</sup>Cs) и "Marinelli" запремине 1500 cm<sup>3</sup> (са хомегеним силиконским материјалом H<sub>6</sub>C<sub>2</sub>OSi густине 0.98 g·cm<sup>-3</sup>). У циљу проширења могућности нумеричких симулација на сложеније геометрије неправилног облика, као и ради повећања тачности калибрације, развијен је геометријски модел детектора NaI(Tl) за Monte Carlo програм MCNP-5 (слика 5.8).



Слика 5.8 MCNP геометријски модел NaI детектора са стандардним калибрационим извором.

Поред оптимизираних геометријских параметара детектора, основу модела представља и добро испитана зависност резолуције детектора од енергије гама зрачења (слика 5.9). У том циљу испитивана је зависност ширине линије ΔЕ на половини висине (FWHM) од енергије за различите изворе зрачења. У самом MCNP коду опција GEB омогућава симулацију резолуције. Ова зависност има облик

$$fwhm(E) = a + b\sqrt{E + cE^2}$$
(5.6)

где је a = -0.01343, b = 0.07731, и c = -01436.



Слика 5.9 Зависност вредности fwhm од енергије гама зрачења.

Вертикални пресек геометријског модела детектора NaI(Tl) за стандардне изворе "тачкасте" геометрије је приказан на слици 5.8. Резултати калибрације ефикасности детектора за стандардне изворе "тачкасте" геометрије на растојању 7.7 ст од базе детектора, добијени експериментално и помоћу нумеричких калибрација су дати на слици 5.10, док су одступања између резултата нумеричке калибрације у односу на експерименталне резултате приказани на слици 5.11. Ови резултати показују да геометријски модел, омогућава тачност за ефикасност детектора од  $\pm 5\%$  за испитивани опсег енергија (од 100 keV до 1,33 MeV). Да би се постигао задовољавајући ниво несигурности за сваку MCNP симулацију коришћено је  $2 \cdot 10^9$  историја.



Слика 5.10 Ефикасност детектора добијена експериментално и нумерички за различите калибрационе изворе.



Слика 5.11 Релативно одступање између експериментално и нумерички добијене ефикасности.

Енергетски спектри за стандардне изворе зрачења <sup>60</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>137</sup>Cs добијени експериментално и коришћењем нумеричких симулација приказани су на сликама 5.12, 5.13 и 5.14, респективно.



Слика 5.12 Енергетски спектар стандарног извора <sup>60</sup>Со.



Слика 5.13 Енергетски спектар стандарног извора <sup>137</sup>Сs.



Слика 5.14 Енергетски спектар стандарног извора <sup>133</sup>Ва.

Поређењем експерименталих и нумеричких вредности за три стандардна извора  ${}^{60}$ Со,  ${}^{133}$ Ва и  ${}^{137}$ Сѕ уочава се добро слагање у оквиру ±4% између енергетских спектара за опсег енергија од интереса (ROI). Овим смо добили још једну верификацију геометријског модела NaI детектора коришћењем MCNP-5 кода.



Слика 5.15 "Marinelli" извор са радионуклидима <sup>241</sup>Am, <sup>137</sup>Cs и <sup>60</sup>Co.

Као пример калибрације ефикасности детектора NaI(Tl) за сложеније геометрије изабран је "Marinelli" извор запремине 1500 cm<sup>3</sup> са четири радионуклида хомогено распоређена у силиконском материјалу H<sub>6</sub>C<sub>2</sub>OSi густине 0.98 g·cm<sup>-3</sup> (слика 5.15). Гама спектар добијен NaI(Tl) детектором приказан је на слици 5.16, док је вертикални пресек геометријског модела детектора NaI(Tl) са "Marinelli" извором је приказан на слици 5.17. Резултати мерења активности радионуклида <sup>241</sup>Am, <sup>137</sup>Cs и <sup>60</sup>Co обрађени према датуму калибрације "Marinelli" извора (3. март 2003. године), помоћу експериментално и нумерички одређене ефикасности детектора су дати у табели 5.2, док су резултати мерења и резултати нумеричких симулација ефикасности NaI(Tl) 2×2 детектора за геометрију "Marinelli" извора приказани на слици 5.18.



Слика 5.16 Спектар "Marinelli" извора снимљен NaI(Tl) детектором.

Нуклид	Активност [Вq]			
, , , , <u> </u>	А <sub>м</sub> (сартификат)	МСNР-5 модел		
		A <sub>C</sub>	$100(A_C/A_M-1)$ %	
<sup>241</sup> Am	$8882 \pm 1.1\%$	$8171\pm8\%$	- 8	
<sup>137</sup> Cs	2644 ± 1.2 %	$2459\pm8\%$	- 7	
<sup>60</sup> Co	2629 ± 1.1 %	2548 ± 8%	- 3.1	

Табела 5.2 Активност радионуклида  $^{241}$ Am,  $^{137}$ Cs и  $^{60}$ Co у "Marinelli" извору.



Слика 5.17 Вертилкалан пресек MCNP геометријског модела детектора NaI(Tl) за "Marinelli" извор.



Слика 5.18 Ефикасност детектора добијена експериментално и нумерички за "Marinelli" извор.



Слика 5.19 Поређење експерименталног и нумеричког спектра извора "Marinelli".

Важну карактеристику детектора представља минимална детектабилна активност (МДА) за карактеристичне радионуклиде. Ова активност се одређује према формули (Abelquist et al., 1998):

$$MDA_{ij} = \frac{3 + 4.65 \sqrt{B_{ij}}}{\varepsilon_{ij} \cdot Y_{ij} \cdot t_m};$$
(5.7)

где је за радионуклид *i*:  $B_{ij}$ -број импулса који се бележи на фону у току мерног интервала  $t_m$  за одређену енергију Ej (ROI),  $\varepsilon_{ij}$ -ефикасност детектора за енергију Ej и  $Y_{i,j}$ вероватноћа емисије гама фотона енергије  $E_j$ . С обзиром да су мерене активности <sup>137</sup>Cs и <sup>60</sup>Co, за ове реадионуклиде вредности за МДА су дате у Табели 5.3.

Табела 5.3 МДА за детектор NaI за време мерења од 3600s

Радионуклид	Енергија [keV]	Принос	MДA [Bq/cm <sup>2</sup> ]
<sup>137</sup> Cs	661.66	0.8521	0.41
<sup>60</sup> Co	1332.501	0.9999	0.47

#### 5.4.1 Покретни систем NaI (Tl) детектора са колиматором

У циљу што лакшег, прецизнијег и бржег мерења површинске активности равних површина објеката и земљишта развијен је покретни систем детектора. Детектор је обавијен оловним колиматором дебљине 4 ст како би се добили поуздани резултати мерења површинских активности у случају нехомогено контаминираних површина бета и снажних гама емитера. Систем детектора је моделован коришћењем MCNP-5-кода (Прилог Ф). Вертикалн пресек геометрије система NaI(Tl) детектора приказан је на слици 5.20.



Слика 5.20 Вертикалан пресек MCNP геометрије система NaI(Tl) детектора са оловним колиматором.

У циљу потврде поузданости система детектора са колиматором, тачкасти извор  $^{137}$ Cs је постављен на различита растојања од базиса детектора. Резултати мерења представљени у облику релативне разлике измерене активности стандарног извора  $^{137}$ Cs за различита растојања од извора до базиса детектора и вредности активности из сертификата су приказани у табели 5.4.

Растојање [cm]	5	10	15	20	25	30	35	40
Релативна разлика A( <sup>137</sup> Cs) [%]	2.6	4.1	3.9	2.7	2.1	2.1	2.1	2.1

Табела 5.4 Активност <sup>137</sup>Cs за различита растојања извора од базиса NaI детектора

# 5.5 Резултати

Претходно развијени MCNP геометријски модели HP210T сонде и NaI(Tl) детектора са колиматором примењени су за мерење укупне површинске активности равних површина и тестирани на сложеном примеру нехомогено контаминираних површина радионуклидима  ${}^{60}$ Co,  ${}^{137}$ Cs и  ${}^{90}$ Sr.

Две Plexiglas плоче истих димензија  $36 \times 18 \text{ cm}^2$  контаминиране су нехомогено, једна воденим раствором <sup>60</sup>Co, друга воденим раствором <sup>137</sup>Cs (слика 5.21). Обе плоче садрже 18 маркираних поља, свако димензије  $6 \times 6 \text{ cm}^2$ . Поља су хомогено контаминирана, на такав начин да је 1, 2 или 3 ml воденог раствора радионуклида веће и мање активности насумично накапано на свако. Тиме је постигнуто да је девет поља (са десне стране) једне плоче нехомогено контаминирано раствором мање активности док је осталих девет поља (са леве стране) контаминирано раствором веће активности истог радионуклида.



Слика 5.21 Фотографија експеримента: две контаминиране стаклене плоче и коришћен прибор.

Свако поље је површине  $36 \text{ cm}^2$  која одговара активној површини NaI детектора, али је нешто већа од активне површине HP210T сонде. Управо је то био разлог детаљног испитивања утицаја радијуса контаминиране површине на ефикасност HP210T сонде, разматраног у претходном поглављу (потпоглавље 5.3.2).

За први пример изабрана је плоча контаминирана радионуклидом <sup>60</sup>Со у циљу демонстрирања потребе за нумеричком калибрацијом HP210T сонде. С обзиром да сонда региструје бета и гама зрачење, утврђивањем фактора К<sub>в</sub> на основу верификованог геометријског модела и Monte Carlo програма MCNP-5, извршено је раздвајање доприноса бета зрачења од доприноса гама зрачења брзини бројања импулса сонде HP210T. Елиминисањем дела импулса генерисаних гама зрачењем, добија се поузданији резултат за активност радионуклида  $^{60}$ Со и  $^{137}$ Сѕ која потиче само услед бета распада. Такође, у случају неуниформно контаминиране плоче (површине), гама зрачење емитовано са суседних поља може имати утицај на активност поља које се мери. Са друге стране, два раствора радионуклида  $^{137}$ Cs (високе и ниске активности) су коришћена да би се испитала примена развијене методе за мерење укупне површинске активности у присуству чистих бета емитера. Односно, у воденом раствору радионуклида  $^{137}$ Cs високе активности садржан је и радионуклид  $^{90}$ Sr (занемарљиве активности у односу на <sup>137</sup>Cs) док је раствор ниске концентрације <sup>137</sup>Cs садржао значајну фракцију радионуклида <sup>90</sup>Sr (10% активности <sup>137</sup>Cs). Ово је било последица уклањања <sup>137</sup>Cs из првог раствора коришћњем WCCS (Water chemistry control system) колона. Са ова два раствора контаминирана је друга плоча поступком описаним као у случају <sup>60</sup>Co.

Одређен напор је уложен како би се смањио број расејаних фотона од околних објеката који не припадају setup-у детектора. Ово је постигнуто извођењем мерења у центру велике, празне лабораторије. Вертикални пресек геометријског MCNP-5 модела експеримента са HP210T сондом приказан је на слици 5.22. У MCNP моделу цела плоча је посматрана као извор зрачења, с тим што је детектор, као и у реалном случају померан изнад сваког поља.



Слика 5.22 Вертикални пресек МСМР геометрије НР210Т сонде, плоче и стола.
Пре мерења површинских активности маркираних поља на плочи, сонда је екпериментално калибрасана. Измерена је вредност фона у лабораторији и стандардне девијације за фон на основу израза 5.1 и 5.2. У циљу калибрације сонде утврђена је експериментална вредност за ефикасност детектора. Користећи пластични носач на растојању 0.28 ст од сонде постављен је стандардни извор <sup>90</sup>Sr познате емисије бета честица у просторни угао  $2\pi$ : S<sub>β</sub> = 1462,87 β/(s·2 $\pi$ ). Број импулса које је регистровала сонда за временски интервал од 60s је:

S:=[25900,25300,25300,25000,24800]. На основу формуле (3.16) ефикасност детектора за извор <sup>90</sup>Sr износи

$$\varepsilon_I = \frac{\frac{1}{5} \sum_{i=1}^{5} (S_i - 28.9) \quad imp/s}{1462.87 \frac{\beta}{2\pi \cdot s} \cdot 60} = 0.2875.$$
(5.8)

#### 5.5.1 Плоча контаминирана <sup>60</sup>Со

Након калибрације сонде, изнад површине сваког поља измерен је укупан број импулса у временском интервалу од 60 s. Специјалне направе су констриусане (слика 5.24 и 5.26) како би се мерења вршила на истом растојању од колиматора детектора до плоче. Растојање између колиматора од волфрама HP210T сонде и контаминиране плоче је фиксно и износи 0.28 cm. На основу симулиране зависности вероватноће детекције од радијуса контаминиране површине (слика 5.5) за ефективну вредност прозора сонде је узета вредност 20 cm<sup>2</sup>. За малу вредност растојања између оловног колиматора NaI детектора и плоче која износи 0.4 cm, вредност од 36 cm<sup>2</sup> (једнака површини поља) је узета као активна површина прозора NaI детектора са колиматором. За ово растојање, тј. за растојање између базиса NaI детектора и плоче од 5.3 cm и ефективну површину 36 cm<sup>2</sup>, вероватноћа детекције за NaI детектор са колиматором износи близу 0.93. Свако мерење поновљено је два пута. Фотографија експеримента са сондом приказана је на слици 5.23.

Минимална детектабилна активност (МДА) је одређена за оба детектора користећи метод који је предложио Currie (Currie, 1968). Утрђено је да МДА за сонду HP210T са колиматором од волфрама и за време мерења од 60s има вредност око 0.2 Bq·cm<sup>-2</sup>, док за исто време мерења за NaI детектор са колиматором од олова ова вредност износи 2 Bq·cm<sup>-2</sup> и 2.5 Bq·cm<sup>-2</sup> за <sup>137</sup>Cs и <sup>60</sup>Co, респективно. Ово имплицира да брза и поуздана мерења са NaI детектором са колиматором од олова могу да се примене само у случајевима значајније површинске контаминације (изнад 2 Bq·cm<sup>-2</sup>).



Слика 5.23. Фотографија експеримента на којој се види начин мерења активности плоче сондом HP210T.

Резултат измерених импулса HP210T сондом услед емисије бета и гама зрачења за i = 1,2,..18 поља за плочу контаминирану <sup>60</sup>Со је следећи:

C <sub>i</sub> (counts)					
15386,67	3955,33	10250	3713,33	2886,67	3103,33
6683,33	15303,33	12853,33	6775	4830	4386,67
11460	14783,33	16583,33	7775	5596,67	5700

Табела 5.5 Средња вредност броја импулса за три мерења (t = 60 s).

Тотална површинска активност (везана и невезана) сваког маркираног поља контаминиране плоче *A<sub>s,i</sub>* се добија на основу израза

$$A_{s,i} = \frac{C_i \cdot K_{\beta,i}^{cal} - C_B}{\varepsilon_I ({}^{90}\text{Sr}) \frac{\varepsilon_{tot,i}^{cal}}{\varepsilon_I^{cal} ({}^{90}\text{Sr})} W T}$$
(5.9)

где је  $C_i$  укупан број импулса измерен сондом изнад сваког поља "i" на плочи,  $\varepsilon_I \left( {}^{90}Sr \right)$  - експериментално одређена ефикасност детектора за стандардни извор  ${}^{90}$ Sr ( $\phi = 4.06$  cm), W – коригована активна површина сонде, T- време мерења, док су  $K_{\beta,i}^{cal}$  и  $\varepsilon_{tot,i}^{cal}$  симулирани параметри за свако поље "i" који урачунавају утицај бета и гама зрачења околних поља, и  $\varepsilon_I^{cal} ({}^{90}Sr)$  симулирана ефикасност детектора за извор  ${}^{90}$ Sr. У циљу урачунавања ефекта самоапсорпције и расејања, контаминација на равној плочи је моделована као танак слој дебљине 0.5 µm, који представља слој униформно распоређеног сувог остатка 3 ml европске минералне воде (Birke, 2010).

Ефекти бета и гама зрачења са суседних поља су урачунати користећи итеративан поступак. У првој итерацији је претпостављено да су параметри  $K_{\beta,i}^{cal}$  и  $\varepsilon_{tot,i}^{cal}$  идентични за свако маркирано поље, и једнаки оним који су добијени за дату геометрију и контаминирану површину једнаку ефективној вредности активне површине прозора GM сонде. Тоталне бета површинске активности добијене у првој итерацији су коришћене као нови извори у Monte Carlo симулацијама за добијање параметара  $K_{\beta,i}^{cal}$  и  $\varepsilon_{tot,i}^{cal}$ . Овај поступак је стопиран када су површинске активности конвергирале реалним вредностима тј. тачним решењима.

Добијене тежинске фракције радионуклида <sup>60</sup>Со на маркираним пољима плоче имају следеће вредности:

wgt					
0.11688	0.03896	0.07792	0.01299	0.02597	0.02597
0.03896	0.11688	0.07792	0.02597	0.02597	0.02597
0.07792	0.07792	0.07792	0.03896	0.03896	0.03896

Табела 5.6 Тежинске фракције радионуклида <sup>60</sup>Со на сваком пољу.



Слика 5.24 Фотографија експерименталног setup-а: носача, HP210T сонде и контаминиране плоче

За ове вредности дистрибуције радионуклида на плочи, добијени су тражени параметри. Наиме,  $K_{\beta,i}$  представља фракцију броја импулса коју стварају бета честице, и израчунава се као

$$K_{\beta,i} = \frac{R_{\beta,i}}{R_{\beta,i} + R_{\gamma,i}}.$$
(5.10)

Помоћу геометријског модела и Monte Carlo програма MCNP-5 извршено је раздвајање доприноса бета зрачења ( $R_{\beta}$ ) од доприноса гама зрачења ( $R_{\gamma}$ ) брзини бројања импулса сонде. Транспорт фотона и секундарних електрона је симулиран у моделу, док је опција tally F8 у MCNP-у коришћена за добијање одзива сонде. Вредност за threshold сонде HP210T за оба радионуклида одређена је експериментално и симулирана у моделу постављањем енергетског прага за фотоне који проузрокују импулсе у сонди. Као извор зрачења коришћен је суви брис оба радионуклида ( $^{60}$ Co и  $^{137}$ Cs) и специјалан поклопац произвођача Canberra (довољно танак да заустави бета зрачење). Поређењем експерименталних мерења са симулираним одзивом сонде на гама зрачење, најбоље слагање је добијено за вредност threshold-а 29.5 keV за  $^{60}$ Co и 44 keV за  $^{137}$ Cs. Такође су вршена испитивања утицаја вредности резолуције (FWHM) на брзину бројања сонде, и утврђено је да се број импулса за стандардни извор не мења када је FWHM  $\geq$  30 keV. Опцијом GEB (30 keV) овај ефекат је укључен у MCNP модел. Добијене вредности на основу MCNP модела експеримента за свако поље за  $R_{\beta}$  и  $R_{\gamma}$  су:

$R_{\beta,i}$					
1.26903.10-2	4.377·10 <sup>-3</sup>	$8.5005 \cdot 10^{-3}$	$1.4774 \cdot 10^{-3}$	$2.8424 \cdot 10^{-3}$	$2.9125 \cdot 10^{-3}$
$4.3776 \cdot 10^{-3}$	$1.2793 \cdot 10^{-2}$	$8.5372 \cdot 10^{-3}$	$2.8508 \cdot 10^{-3}$	$2.8397 \cdot 10^{-3}$	$2.8537 \cdot 10^{-3}$
$8.4693 \cdot 10^{-3}$	$8.6198 \cdot 10^{-3}$	$1.2684 \cdot 10^{-2}$	$4.2783 \cdot 10^{-3}$	$4.2303 \cdot 10^{-3}$	$4.2395 \cdot 10^{-3}$

$R_{\gamma,i}$					
$8.2076 \cdot 10^{-4}$	$4.0322 \cdot 10^{-4}$	$5.8544 \cdot 10^{-4}$	$1.7181 \cdot 10^{-4}$	$2.7818 \cdot 10^{-4}$	$2.7057 \cdot 10^{-4}$
$4.1350 \cdot 10^{-4}$	9.0886 · 10 <sup>-4</sup>	$6.598 \cdot 10^{-4}$	$2.2686 \cdot 10^{-4}$	$2.4925 \cdot 10^{-4}$	$2.3573 \cdot 10^{-4}$
$6.0488 \cdot 10^{-4}$	$6.7463 \cdot 10^{-4}$	8.6409 · 10 <sup>-4</sup>	2.9478·10 <sup>-4</sup>	$3.1584 \cdot 10^{-4}$	$2.9342 \cdot 10^{-4}$

На основу формуле (5.10) фракција коју стварају бета честице у односу на укупни број импулса је, за свако поље:

Табела 5.8 Фракција бета честица <sup>60</sup>Со за свако поље у односу на укупан број импулса.

$\mathrm{K}_{eta,i}$					
0.939253009	0.91564843	0.935566072	0.89582502	0.910855148	0.914998307
0.9136947133	0.93367045	0.928254370	0.926289659	0.919309150	0.923697002
0.933340636	0.92741617	0.936222620	0.935539956	0.9305262907	0.935268892

односно, за отворени извор <sup>60</sup>Со мерени и симулирани параметар  $K_{\beta}$  има средњу вредност око 0.92, док параметар  $\varepsilon_{tot}^{cal} / \varepsilon_I^{cal} ({}^{90}\text{Sr})$ за свако поље на плочи има следеће вредности дате у табели 5.9:

калиорациони.					
$arepsilon_{tot}^{cal} / arepsilon_{I}^{cal} (^{90}{ m Sr})_{i}$					
0,256005371	0.264895749	0.257224848	0.268167618	0.258065908	0.264430396
0.264932061	0.258083222	0.258335389	0.258828557	0.257820771	0.259091853
0.256280737	0.260834862	0.255886349	0.258922432	0.256017475	0.256574259

Табела 5.9 Однос симулираних вредности тоталне ефикасности за реалан извор и калибрациони

С обзиром да су вредности за  $K_{\beta}^{cal}$  and  $\varepsilon_{tot}^{cal} / \varepsilon_{I}^{cal} ({}^{90}\text{Sr})$  добијене коришћењем Monte Carlo симулација, грешка њиховог одређивања је сведена на минумим, јер представљају однос две нумерички добијене величине.

Ако узмемо у обзир да је максимална енергија бета честица <sup>60</sup>Со  $E_{\text{макс}}$ = 317.861 keV, вредност за  $\varepsilon_s$  (формула 3.15, 3.17) би у случају <sup>60</sup>Со износила  $\varepsilon_s$  = 0.25 (ISO, 1998), што је у сагласности са нумеричким вредностима добијеним за параметар  $\varepsilon_{tot}^{cal} / \varepsilon_I^{cal} ({}^{90}Sr)$ .

На крају, ако се за активну површину сонде узме  $A = \pi \cdot (2.525 + 0.28)^2$  за површинску активност сваког поља плоче на основу израза (5.9) се добија:

Ahp (Bq/cm <sup>2</sup> )						
132.413	45.837	87.446	29.096	23.898	25.188	
54.065	129.859	108.331	56.872	40.396	36.683	
97.895	123.292	142.317	65.894	47.714	48.736	

Табела 5.10 Површинска активност сваког поља за  $^{60}$ Со.

Сличан итеративни поступак је примењен за мерење тоталне површинске активности у случају гама зрачења (нпр.  $^{60}$ Co и  $^{137}$ Cs), без ефекта коицидентног сумирања у кристалу NaI, која се добија на основу формуле

$$A_{i,j} = \frac{C_{i,j}}{\varepsilon_{i,j}^{cal} \cdot Y_j \cdot W \cdot T}$$
(5.11)

где је *С<sub>i,j</sub>* број импулса изнад поља "*i*" испод гама линије *Еj* измерен NaI детектором са

колиматором;  $\varepsilon_{i,j}^{cal}$  је нумерички одређена ефикасност детектора на основу Monte Carlo програма MCNP-5 (прилог Ф, слика 5.25) за позицију детектора изнад поља "*i*" за енергију *Ej*; *Y<sub>j</sub>* је принос за линију *Ej*; *W* је површина детектора; *T* је време мерења и *i* - је број поља на плочи.



Слика 5.25 Вертикални пресек MCNP геометријског модела екперимента са NaI детектором.

Као иницијална претпоставка, за активну површину детектора узета је вредност површине контаминираног поља за добијање  $\varepsilon_{i,j}^{cal}$ . Поново, тотална површинска активност добијена у првој итерацији је користила као извор у следећој. Итерације су прекинуте када су површинске активности сваког поља тежиле реалним вредностима.



Слика 5.26 Фотографија експеримента са системом NaI детектора са колиматором.

На основу помоћне апаратуре приказане на слици 5.26, извршена су мерења одржавајући исто растојање између оловног колиматора NaI детектора и контаминиране плоче. Измерене вредности импулса за линију 1332,5 keV изнад сваког маркираног поља на плочи за временски интервал од 300 s су:

Ci					
5036	3310	3782	2526	1461	1539
3586	5916	5399	2982	2181	2018
3968	6688	6335	3219	2487	2341

Табела 5.11 Број импулса испод линије 1332,5 keV за свако поље.

Добијене вредности за ефикасност система NaI детектора за положај базиса изнад сваког маркираног поља су:

Табела 5.12 Симулиране ефикасности NaI детектора за свако поље.

$arepsilon_{i,j}^{cal}$					
0.0036775	0.0065614	0.0040317	0.0083417	0.0062053	0.0063813
0.0066161	0.0042333	0.0049454	0.0049849	0.00559537	0.00517818
0.0041535	0.0050650	0.0040092	0.00426728	0.00457004	0.00417046

Уколико је активна површина детектора W=5.8<sup>2</sup>, користећи израз:

$$A_{i} = \frac{C_{i}}{\varepsilon_{i,i}^{cal} \cdot 0,999 \cdot W \cdot T}, \quad i = 1, 2, ..18$$
(5.12)

добија се за активност сваког поља у сличају плоче контаминиране <sup>60</sup>Со:

Табела 5.13 Активности поља добијене коришћењем NaI детектора и симулиране ефикасности.

Anai <sub>i</sub> (Bq/cm <sup>2</sup> )					
131.132	48.308	89.827	28.997	22.546	23.094
51.902	133.822	104.541	57.283	37.325	37.318
91.481	126.442	151.307	72.234	52.111	53.752

Резултати за просторно зависну тоталну површинску активност (везану и невезану) у случају плоче контаминиране <sup>60</sup>Со и релативно одступање између метода, приказани су у табели 5.14.

HP210T [Bq cm <sup>-2</sup> ] NaI 2×2" [Bq cm <sup>-2</sup> ] 100 (HP210T/ NaI-1)	Површинска активност плоче контаминиране <sup>60</sup> Со		
132.4	45.8	87.4	
131.1	48.3	89.8	
0.98%	-5.11%	-2.65%	
54.1	129.9	108.3	
51.9	133.8	104.5	
4.17%	-2.96%	3.62%	
97.9	123.3	142.3	
91.5	126.4	151.3	
7.01%	-2.49%	3.62%	
29.10	23.9	25.2	
29.00	22.5	23.1	
0.34%	6.00%	9.07%	
56.9	40.4	36.7	
57.3	37.3	37.3	
-0.72%	8.23%	-1.70%	
65.9	47.7	48.7	
72.2	52.1	53.7	
-8.78%	-8.44%	-9.33%	

Табела 5.14 Активност сваког поља измерена са HP210T сондом и NaI детектором и релативно одступање између метода.

На основу анализе резултата приказаних у табели може се закључити добро слагање резултата између две различите методе мерења површинских активности HP210T сондом и NaI детектором у границама релативне грешке од 10%.

### 5.5.2 Плоча контаминирана <sup>137</sup>Сs

У случају плоче контаминиране  $^{137}$ Cs примењена је иста методологија, и после две итерације MCNP модела GM сонде, добијене су вредности тежинских фракција радионуклида  $^{137}$ Cs по пољима (i=1, 2, 3...18):

wgt <sub>i</sub>								
0.1635226	0.0545075	0.1090151	0.0028297	0.0028297	0.0028297			
0.1090151	0.1635226	0.0545075	0.0018864	9.43218·10 <sup>-4</sup>	0.0018864			
0.1090151	0.0545075	0.1635226	0.0018864	0.0018864	0.0018864			

Табела 5.15 Тежинске фракције радионуклида <sup>137</sup>Сѕ на плочи.

Мерења са претходно калибрисаном HP210T сондом су вршена на истом растојању између сонде и плоче као и у случају калибрације за временски интервал од 60 s. За свако поље мерење је поновљено 3 пута. Резултат измерених импулса услед емисије бета и гама зрачења за 18 поља је следећи:

Ci								
29566,67	12183,33	16870	566,33	709,67	769,33			
18373,33	34866,67	11563,33	514,67 219,67		473			
18733,33	11783,33	25050	437,67	364,67	534			

Табела 5.16 Средња вредност импулса за три мерења за свако поље.

За израчунавање површинске активност користи се израз (5.7), са том разликом што су фактори  $K_{\beta,i}^{cal}$  и  $\varepsilon_{tot,i}^{cal}$  симулирани укључујући бета честице <sup>137</sup>Cs и електроне конверзије <sup>137m</sup>Ba (624.22 и 655.67 keV са приносом 7.43% и 1.34%, респективно). На основу тога, као резултат програма MCNP-5 добијају се доприноси бета и гама зрачења укупном броју импулса сонде:

Табела 5.17 Допринос бета и гама зрачења <sup>137</sup>Сs брзини бројања импулса сонде за свако поље.

$R_{\beta,i}$								
$1.05982 \cdot 10^3$	$3.70705 \cdot 10^2$	$7.06278\cdot10^2$	$2.09701 \cdot 10^{1}$	$1.92262 \cdot 10^{1}$	$2.43438\cdot 10^1$			
$7.19274 \cdot 10^2$	$1.06213 \cdot 10^3$	$3.67602 \cdot 10^2$	$1.31561 \cdot 10^{1}$	7.04552	$2.8537 \cdot 10^{-3}$			
$7.04008 \cdot 10^2$	$3.69355 \cdot 10^2$	$1.05391 \cdot 10^3$	12.7678	13.2262	13.1271			

$R_{\gamma,i}$								
$5.2591 \cdot 10^{-1}$	2.47546· 10 <sup>-1</sup>	3.82446· 10 <sup>-1</sup>	3.14996· 10 <sup>-2</sup>	3.69778·10 <sup>-2</sup>	1.47226· 10 <sup>-2</sup>			
$4.13261 \cdot 10^{-1}$	$2.41725 \cdot 10^{-1}$	$3.72175 \cdot 10^{-1}$	1.19835· 10 <sup>-2</sup>	$2.4925 \cdot 10^{-4}$	1.47226· 10 <sup>-2</sup>			
2.44807·10 <sup>-1</sup>	5.38232·10 <sup>-1</sup>	3.7320· 10 <sup>-2</sup>	1.12988· 10 <sup>-2</sup>	1.12988· 10 <sup>-2</sup>	8.90206· 10 <sup>-3</sup>			

На основу израза (5.10) следи:

$K_{\beta,i}$								
0.9995040241	0.999332675	0.999458798	0.998223475	0.9983643113	0.998483321			
0.999425777	0.999470967	0.999342859	0.998882181	0.9983020199	0.998848224			
0.9994716276	0.999337643	0.999489560	0.999146455	0.999124843	0.999322316			

Табела 5.18 Фракција бета честица <sup>137</sup>Сѕ за свако поље у односу на укупан број импулса

На основу резултата за  $K_{\beta}$  може се закључити да допринос бета зрачења укупној брзини бројања импулса сонде износи 99,9%, односно гама зрачење <sup>137</sup>Cs не доприноси брзини бројања импулса сонде.

Параметар  $\varepsilon_{tot}^{cal} / \varepsilon_I^{cal} ({}^{90}Sr)$  за свако поље на плочи је дат у табели 5.19.

Табела 5.19 Однос симулираних вредности тоталне ефикасности за реалан извор <sup>137</sup>Сs и калибрациони <sup>90</sup>Sr.

$arepsilon_{tot}^{cal}$ / $arepsilon_{I}^{cal}$ ( $^{90}$ Sr ) <sub>i</sub>								
0.6975493417	0.7319691651	0.697283883	0.797591859	0.731263113	0.925909591			
0.7101143851	0.699069731	0.725842190	0.750609375	0.803936358	0.728455270			
0.6950427904	0.7293035459	0.6936595145	0.754608867	0.735957883	0.748954806			

На основу ових резултата може се закључити да се вредност за ефикасности извора предложену у NUREG-у која за емитере чија максимална енергија бета зрачења прелази вредност 400 keV, што је управо у случају <sup>137</sup>Cs ( $E_{\text{макс}}=513.41$  keV) износи  $\varepsilon_{s} = 0.5$  разликује од нумерички добијених вредности  $\varepsilon_{tot}^{cal} / \varepsilon_{I}^{cal} ({}^{90}Sr)$ . Такође поређењем вредности  $\varepsilon_{tot}^{cal} / \varepsilon_{I}^{cal} ({}^{90}Sr)$  за <sup>137</sup>Cs и <sup>60</sup>Co, (иста геометрија извор детектор и структура површине извора), може се рећи да на вредности  $\varepsilon_{tot}$  у великој мери поред  $E_{\beta max}$  емитованих честица, утиче и њихова енергетска дистрибуција.

Површинске активности сваког поља у случају плоче контаминиране <sup>137</sup>Cs на основу израза (5.9) су:

Ahp (Bq/cm <sup>2</sup> )								
198.74	78.031	113.44	3.33	4.54	3.89			
121.31	233.85	74.69	3.21	1.28	3.04			
126.37	75.74	169.33	2.72	2.32	3.34			

Табела 5.20. Површинска активност сваког поља за <sup>60</sup>Со

Користећи геометријски MCNP модел NaI детектора, после две итерације, добијене су вредности за ефикасност система NaI детектора за положај базиса изнад сваког маркираног поља (Прилог Ф):

$arepsilon_{i,j}^{cal}$								
0.00783257	0.01079339	0.007825253	0.03327354	0.01808393	0.02487038			
0.00907379	0.008137996	0.1081074	0.00955535	0.01286471	0.009395539			
0.00804355	0.01085006	0.007684539	0.009100654	0.00931981	0.009120952			

Табела 5.21 Симулиране ефикасности NaI детектора за свако поље за <sup>137</sup>Сs.

Измерене вредости импулса изнад сваког поља NaI детектором (слика 5.26) за временски интервали од 300 s су:

Ci								
14591	7777	9738	865	695	727			
11202	18930	7282	218	113	224			
9984	8600	14341	160	146,	240			

Табела 5.22 Број импулса испод линије 661,66 keV за свако поље.

На основу израза за активност:

$$A_{i} = \frac{C_{i}}{\varepsilon_{i,j}^{cal} \cdot 0.8521 \cdot W \cdot T}, \quad i = 1, 2, ..18$$
(5.13)

коначно се добија активност сваког поља контаминираног <sup>137</sup>Cs:

Табела 5.23 Активности поља добијене коришћењем NaI детектора и симулиране

ефикасности.
--------------

Anai <sub>i</sub> (Bq/cm <sup>2</sup> )								
184.588	71.396 123.309 2.576 3.808							
122.329	230.492	66.745	2.261	0.870	2.362			
122.993	78.540	184.920	1.742	1.552	2.607			

У табели 5.24 су приказани резултати мерења површинских активности за 18 поља плоче контаминиране <sup>137</sup>Сs коришћењем HP210T сонде и NaI покретног детектора.

HP210T [Bo NaI 2×2" [B 100 (HP210T	$q cm^{-2}$ ] $q cm^{-2}$ ] $\gamma$ NaI-1)	Површинска активност плоче контаминира <sup>137</sup> Cs				иране	
198.7			78.0			113.4	
184.6	1		71.4			123.3	
7.67%	)		9.29%			-8.01%	
121.3			233.8			74.7	
122.3			230.5			66.7	
-0.83%	0	1.46% 11.90%			11.90%		
126.4			75.7			169.3	
123.0	)		78.5			184.9	
2.75%	)		-3.56%			-8.43%	
3.3			4.5			3.9	
2.6	3.5	3.8		5.2	2.90		3.98
29.1	-6.1%	19.2		-13.2%	34.4		-2.3%
3.2			1.3			3.0	
2.3	3.1	0.9		1.20	2.36		3.25
42.1	3.4%	47.0		6.9%	28.8		-6.3%
2.7			2.3			3.3	
1.7	2.4	1.55		2.13	2.61		3.59
56.05	13.5%	49.6		8.8%	28.1		-6.7%

Табела 5.24 Активност сваког поља измерена са HP210T сондом и NaI детектором и релативно одступање између метода.

Резултати површинских активности за плочу контаминирану <sup>137</sup>Cs представљени су у табели 5.24 (табела репрезентује плочу са маркираним пољима). И овог пута, слагање између метода за поља која су контаминирана раствором <sup>137</sup>Сѕ високе активности ( девет поља у горњој половини плоче) је у оквиру ±10%. Међутим, велике разлике између резултата могу се уочити за вредности у пољима на доњој страни плоче, која су контаминирана раствором <sup>137</sup>Cs ниске активности. Ови резултати, (дати на левој страни маркираног поља на доњој половини плоче) имплицирају постојање радионуклида који имају заједничку карактеристику да емитују зрачење ниских енергија које је немогуће или тешко измерити. Метод који омогућава реалну процену потенцијалних радионклида који емитују зрачење ниских енергија у мешавини различитих радиоактивних супстанци је корелациони метод или метод scaling factora. У претходном поглављу (3.5) је демонстрирано да активност радионуклида који не емитују гама зрачење, некад могу бити у корелацији са радионуклидима који емитују снажно гама зрачење, те су у том смислу једноставни за идентификацију. Међу фисионим продуктима, растворљиви <sup>137</sup>Сѕ је пожељан кандидат за корелацију са бета емитујућим радионуклидима као што су <sup>90</sup>Sr, <sup>99</sup>Tc and <sup>129</sup>I. Из тог разлога, scaling factor за  ${}^{90}$ Sr/ ${}^{137}$ Cs је реално процењен за поља на доњој површини контаминиране плоче са <sup>137</sup>Сs. Мерењем бета спектра честица са сувог бриса узетог са поља на доњој површини плоче, после мерења са GM сондом NaI детектором, користећи полупроводнички Si детектор, потврђено је просуство радионуклида <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr and Y<sup>90</sup>. Користећи недеструктиван метод (описан у претходном поглављу 4) добијена је вредност за scaling factor за свако поље контаминирано са  $^{90}$ Sr. За пример једног поља он износи:

scaling factor = 
$$\frac{A(Cs) + 2A(Sr)}{A(Cs)} = 1.375$$
(5.14)

Након корекције резултата, множењем активности измерених NaI детектором са scling factor-ом за свако поље (резултати са десне стране сваке ћелије на доњој половини плоче), постигнуто је много боље слагање између резултата добијених са две различите методе (у границама релативне грешке од 14%).

На основу доброг слагања добијених резултата мерења тоталних површинских активности која се базирају на различитом типу емитованог зрачења и коришћењем различитих деетектора, може се закључити колика је значајност коришћења Monte Carlo симулираних ефикасности детектора и у најкомпликованијим случајевима интерференције зрачења.

#### 6 ЗАКЉУЧАК

У оквиру овог рада развијена је и тестирана нова метода за детекцију тешко-мерљивих радионуклида бета емитера (E<sub>max</sub> > 0.15 keV) у ваздуху, чврстом и течном узорку познате геометрије, и побољшана је стандардна метода за одређивање укупне површинске активности (везане и невезане) у случају контаминације површина радионуклидима који су бета и гама емитери. Методе се базирају на геометријским моделима детектора коришћењем Monte Carlo симулација и MCNP-5 кода. Предност ових метода у односу на стандарне се огледа у томе, што у случају прве, коришћењем MCNP модела PD450-15-500AM детектора, се врло брзо, у року од неколико часова у зависности од активности узорка и атомског састава може добити специфична активност бета и гама емитера у узорку, уз минимално излагање особља радиоактивном зрачењу. Са друге стране, развој и употреба бетаспектометријских метода представља значајан допринос науци, с обзиром на тежину проблема карактеризације ове врсте зрачења узимајући у обзир његову континуалну природу. У другој методи Monte Carlo симулације су коришћене за добијање ефикасности детектора које зависе од реалних услова, и урачунавају разлике у енергији зрачења и геометрији у односу на услове у процесу калибрације. Такође, вредности за ефикасност реалних извора, које су предложене интернационалним стандардом, у овом раду, нумеричком методом су прецизније одређене.

Први корак је у овим методама је моделовање детектора. Димензије детектора које нису дате од стране произвођача, одређене су експериментално или су добијене на основу Monte Carlo симулација. У случају PIPS детектора, то се првенствено односи на мртви слој детектора око активног кристала Si, и омски контакт непознате дебљине и хемијског састава. На основу бројних симулација утврђено је да димензије хоризонталних и вертикалних мртвих слојева детектора износе 0.05 µm и 500 µm, респективно, док је конектор од злата дебљине 20 µm. Енергетска калибрација PD450-15-500AM детектора урађена је коришћењем три отворена стандардна извора <sup>109</sup>Cd (88.03 keV), <sup>137m</sup>Ba (624.22 keV) и <sup>207</sup> Bi (481.69 keV, 98 975.65 keV и 1682.22 keV). Анализе су показале да гама зрачење стандардних извора коришћених у процесу калибрације немају утицај на остварену везу енергија/канал. Функција одзива детектора на бета честице моделована коришћењем Monte Carlo симулација је верификована коришћењем три стандардна извора <sup>36</sup>Cl, <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y. Симулирани спектри су показали добро слагање са експерименталним у границама релативне грешке ±10% у целом опсегу енергија од интереса. Са друге стране ове разлике су биле чак мање за извор <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y, који је компликованији за моделовање, с обзиром да се спектар простире од 0 до 2.2 MeV.

Резултати мерења активности <sup>137</sup>Cs коришћењем MCNP геометријског модела PIPS детектора и LSI методе, су показали, у поређењу са стандардним гамаспектрометријским методама малу разлику између добијених активности на основу које се може закључити да развијен не-деструктивни метод представља поуздан метод за квантитавну анализу тешко-мерљивих радионуклида <sup>90</sup>Sr, <sup>63</sup>Ni, <sup>99</sup>Tc, итд.

У другој методи за мерење укупне површинске активности равних површина које су нехомогено контаминиране радионуклидима који емитују бета и гама зрачење су, коришћењем Monte Carlo симулација, нумерички одређене ефикасности детектора. У случају сонде HP210T, у првом кораку, на основу MCNP геометријског модела утврђено је да непозната дебљина MICA прозора износи 6 µm. Резултати експерименталне и нумеричке калибрације сонде HP210T за три стандардна извора. различитих површина и енергија бета зрачења, су показали да се добијене ефикасности сонде налазе у опсегу  $\pm 6\%$ , ті. не прелазе вредност експерименталне неодређености параметара, на основу чега је модел верификован. Такође, на основу њих се може закључити да на ефикасност детектора утиче геометрија извор детектор, тј. растојање извора од детектора, радијус самог извора, и енергетска дистрибуција емитованог зрачења из извора. Другим речима, са повећањем радијуса извора смањује се ефикасност детектора као и са повећањем Е<sub>втах</sub>. Тај закључак је потврћен детаљним испитивањем утицаја радијуса контаминиране површине на симулирану вероватноћу детекције бета честица за актуелан извор. На основу МСЛР модела сонде утврђен је и фактор К<sub>в</sub> који елиминише импулсе сонде које генерише гама зрачење из извора и околине. У актуелном случају контаминиране плоче <sup>60</sup>Со утврђено је да 10% генерисаних импулса потиче од гама зрачења, док је у случају <sup>137</sup>Сs тај удео занемарљив. У циљу побољшања стандардне методе нумеричким симулацијама добијена је тотална ефикасност GM детектора, у којој су урачунате различите карактеристике геометрије детектора и/или извора и разлике у енергије зрачења калибрационог извора и контаминиране површине (реалног извора). У циљу провере ове методе у условима где су присутни снажни гама емитери, предложен је и други метод за мерење укупне површинске активности контаминираних површина радионуклидима који поред емисије бета зрачења емитују и ниско-енергетске фотоне или снажно гама зрачење, базиран на концепту покретног NaI детектора са колиматором. MCNP модел система NaI детектора је верификован коришћењем три стандардна извора <sup>60</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>137</sup>Cs и постигнуто је добро слагање ca експерименталним вредностима, у границама релативне грешке од ±4%, а за изворе  $^{241}$ Am,  $^{137}$ Cs и  $^{60}$ Co у Marinelli геометрији ±8%. Систем је такође тестиран за различита растојања тачкастог извора од базиса детектора и показао се као поуздан.

Примењивањем развијене методологије на сложеном примеру јако нехомогено контаминираних равних плоча радионуклидима <sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr добијени су добри резултати. Њиховим поређењем уочава се добро слагање између две методе у оквиру ±10% за <sup>60</sup>Co и <sup>137</sup>Cs и ±14% у случају <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr. Резултати показују да нумерички добијене ефикасности коришћењем Monte Carlo симулација за GM сонду и NaI детектор са колиматором, могу да се искористе за брзо и прецизно директно мерење укупне (везане и невезане) површинске активности у случају интерферујућих бета и гама зрачења у различитим случајевима.

Предложене брзе недеструктивне методе се могу користити у процесу каратеризације генерисаног отпада при декомисији нуклеарних реактора и постројења, у контроли и приликом складиштења радиоактивног отпада и мерењима активности радионуклида у животној средини.

#### Прилог А

#### MCNP модел PD450-15-500AM PIPS детектора за стандардни извор зрачења <sup>90</sup>Sr. 1mcnp version 4c1 ld=08/22/00 10/13/09 10:16:48 \*\*\*\*\*\* probid = 10/13/09 10:16:48 n=pdsr90 tasks 9x1 1-MCNP model of PD450-15-500AM PIPS detector for EBERLINE Sr-90 source 2-Cell cards /\* U modelu se definišu ćelije detektora: indeks ćelije, indeks с materijala i ukupna atomska frakcija u određenom materijalu/\* 3-1 1 4.996030e-02 -1 2 -3 vol=2.25890e-01 **\$ PIPS detector** 4-2 2 5.900867e-02 -1 9 -8 \$ Au layer 5-3 5 6.023807e-02 -1 4 -5 **\$** Al window 4 1 4.996030e-02 -7 9 -5 #1 #2 #3 6-\$ Si crystal \*/ ćelije 7-5 3 4.964002e-05 -1 5 -12 **\$** Air window detektora/\* 3 4.964002e-05 7 -6 9 -5 8-6 \$ Air gap 9-7 3 4.964002e-05 10 -6 11 -9 **\$** Air in detector shield 10-4 8.526221e-02 -13 14 -12 8 **\$ Detector shield** 11-#1 #2 #3 #4 #5 #6 #7 5 6.023807e-02 -15 16 -21 12-9 **\$ Al-holder of source** 5 6.023807e-02 17 -18 19 -20 21 -22 13-10 **\$** Al-holder (upper) 5 6.023807e-02 17 -18 19 -20 23 -24 14-11 **\$ Al-holder (lower)** 5 6.023807e-02 25 -18 19 -20 22 -23 \$ Al-holder (side) 15-12 3 4.964002e-05 -26 17 -27 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7 #8 16-13 17-#9 #10 #11 #12 **\$** Air in box 18-14 4 8.526221e-02 26 -28 17 -27 **\$ Radial wall of box** 19-15 4 8.526221e-02 -28 29 -17 **\$ Back wall of box** 20-16 4 8.526221e-02 -28 27 -30 **\$ Door of box** 21-17 0 28:-29:30 \$ Void

22-

23-	ko	c ordi	Surface cards /* - Karta površina u kojoj se definišu površine u xzy matnom sistemu kojima su definisane ćelije detektora*/
24-	c	(pos	=0 0 0.45 at source surface, source to Si surface distance 0.45 cm)
25-	1	cz	1.1968
26-	2	pz	-0.050207
27-	3	pz	-0.000007 \$ 0.05 cm of Si
28-	4	pz	-0.000002 \$ 0.02 cm (200 A) of Al window
29-	5	pz	0.0000
30-	6	cz	1.4750
31-	7	cz	1.2450
31-	7	cz	1.2450
32-	8	pz	-0.050212 \$ 0.05 cm of Si
33-	9	pz	-0.052212 \$ 20 cm of Au
34-	10	cz	0.2500
35-	11	pz	-1.0300
36-	12	pz	0.1000
37-	13	cz	1.5750
38-	14	pz	-1.1300
39-	с		
40-	15	cz	2.50
41-	16	pz	0.45
42-	17	px	-5.10
43-	18	рх	2.60
44-	19	ру	-1.92
45-	20	ру	1.92
46-	21	pz	0.48
47-	22	pz	0.78
48-	23	pz	2.68
49-	24	pz	2.98

50- 25 px 2.30

- 51- 26 c/x 0.0000 2.9650 6.6550
- 52- 27 px 5.10
- 53- 28 c/x 0.0000 2.9650 7.3750
- 54- 29 px -5.75
- 55- 30 px 5.75
- 57- c Data cards /\*Karta podataka u kojoj se definiše biblioteka nuklearnih podataka i materijali detektora (atomske frakcije sastavnih elemenata materijala)\*/
- 58- c MCNP Library: el03
- 60- m1 estep=15
- 61- 14000.03e 4.996030e-02 \$ si \*/Silicijum/\*
- 62- c Au-contact \*/Konektor od zlata/\*
- 63- m2 estep=15
- 64- 79000.03e 5.900867e-02 \$ au
- 65- c Dry air
- 66- m3 estep=15 \*/vazduh/\*
- 67- 6000.03e 8.015400e-09 \$ air
- 68- 7014.03e 3.912200e-05
- 69- 8016.03e 1.051000e-05
- 70- c SS-housing \*/čelično kućište/\*
- 71- m4 24000.03e 1.565292e-02 \$ ss-304
- 72- 25055.03e 1.307181e-03
- 73- 26000.03e 5.551006e-02
- 74- 28000.03e 1.141974e-02
- 75- 42000.03e 1.372305e-03
- 76- c Al-holder \*/aluminijumski držač/\*
- 77- m5 13027.03e 6.023807e-02 \$ al
- 78- c Source definition (za Sr-90, 1 beta in 2 pi) /\* Deo modela koji definiše karakteristike izvora: položaj, radijus, vrstu emitovanog zračenja i energetsku raspodelu i aktivnost izvora\*/
- 79- sdef sur=16 par=3 erg=d1 rad=d2 pos=d3 vec=0 0 1 nrm=-1 wgt=1.0000

80-	si1 H 0.0001 0.0273 0.0546 0.0819 0.1092	
81-	0.1365 0.1638 0.1911 0.2184 0.2457	
82-	0.2730 0.3003 0.3276 0.3549 0.3822	
83-	0.4095 0.4368 0.4641 0.4914 0.5187	
84-	0.5460	*/spektar beta čestica Sr-90 /*
85-	sp1 D 0.00E+00 7.79E-02 7.60E-02 7.50E-02 7.40E-02	
86-	7.30E-02 7.17E-02 7.01E-02 6.80E-02 6.53E-02	
87-	6.19E-02 5.78E-02 5.27E-02 4.68E-02 4.01E-02	
88-	3.27E-02 2.48E-02 1.71E-02 9.75E-03 4.28E-03	
89-	1.01E-03	
90-	si2 0.00 2.0300 */d	efinisan radijus i distribucija izvora*/
91-	sp2 -21 1	
92-	si3 L 0.00 0.0000 0.4500	*/definisana pozicija izvora/*
93-	sp3 D 1.00	
94-	imp:e 1 15r 0	
94-	<ul> <li>imp:e 1 15r 0</li> <li>/* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, br</li> </ul>	nodela, fizika interakcije čestica, oj istorija/*
94- 95-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, br mode e \$electron problem	nodela, fizika interakcije čestica, oj istorija/*
94- 95- 96-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem phys:e 10.0000011111 \$ max E(e)=10 MeV, e will proposed	nodela, fizika interakcije čestica, oj istorija/* <sup>duce p</sup>
94- 95- 96- 97-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem phys:e 10.0000011111 \$ max E(e)=10 MeV, e will propose 20+7	nodela, fizika interakcije čestica, roj istorija/* <sup>duce p</sup>
94- 95- 96- 97- 98-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem phys:e 10.0 0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will propose 10.0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will propose 20+7 prdmp 20+7 1+5 20+7 1 1+4	nodela, fizika interakcije čestica, oj istorija/* <sup>duce p</sup>
94- 95- 96- 97- 98- 99-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem phys:e 10.0 0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will propose 20+7 prdmp 20+7 1+5 20+7 1 1+4 print	nodela, fizika interakcije čestica, oj istorija/* <sup>duce p</sup>
94- 95- 96- 97- 98- 99- 100-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem phys:e 10.0 0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will propose nps 20+7 prdmp 20+7 1+5 20+7 1 1+4 print fc18 tally for pulse height in cells 1,	nodela, fizika interakcije čestica, roj istorija/* duce p */definisan zadatak modela /*
94- 95- 96- 97- 98- 99- 100- 101-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem phys:e 10.0 0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will propose nps 20+7 prdmp 20+7 1+5 20+7 1 1+4 print fc18 tally for pulse height in cells 1, f18:e 1 \$ pulse height in cells 1,	nodela, fizika interakcije čestica, roj istorija/* duce p */definisan zadatak modela /*
94- 95- 96- 97- 98- 99- 100- 101- 102-	imp:e 1 15r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem phys:e 10.0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will propose nps 20+7 prdmp 20+7 1+5 20+7 1 1+4 print fc18 tally for pulse height in cells 1, f18:e 1 \$ pulse height in cells 1, f18:e 1 \$ pulse height in cells 1,	nodela, fizika interakcije čestica, oj istorija/* duce p */definisan zadatak modela /* */definisana rezolucijadetektora/*
94- 95- 96- 97- 98- 99- 100- 101- 102- 103-	imp:e 1 15r 0          /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem         mode e \$ electron problem         phys:e 10.0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will pro         nps 20+7         prdmp 20+7 1+5 20+7 1 1+4         print         fc18 tally for pulse height in cells 1,         f18:e 1       \$ pulse height in cells 1,         f18       GEB 1.100000e-02 0.0 0.0         e18       0.0 4.027219e-03 509i 2.057909	nodela, fizika interakcije čestica, oj istorija/* duce p */definisan zadatak modela /* */definisana rezolucijadetektora/* */amplitudska raspodela/*
94- 95- 96- 97- 98- 99- 100- 101- 102- 103- 104-	imp:e 1 15r 0          /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$ electron problem         mode e \$ electron problem         phys:e 10.0 0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will pro         nps 20+7         prdmp 20+7 1+5 20+7 1 1+4         print         fc18 tally for pulse height in cells 1,         f18:e 1       \$ pulse height in cells 1,         f18:e 1       \$ pulse height in cells 1,         f18       GEB 1.100000e-02 0.0 0.0         e18       0.0 4.027219e-03 509i 2.057909         em18       1 511r	nodela, fizika interakcije čestica, roj istorija/* duce p */definisan zadatak modela /* */definisana rezolucijadetektora/* */amplitudska raspodela/*
<ul> <li>94-</li> <li>95-</li> <li>96-</li> <li>97-</li> <li>98-</li> <li>99-</li> <li>100-</li> <li>101-</li> <li>102-</li> <li>103-</li> <li>104-</li> <li>105-</li> </ul>	<pre>imp:e 115r 0 /* Deo modela u kojem se definiše zadatak u rezolucija detektora, amplitudska raspodela, bu mode e \$electron problem phys:e 10.0000011111\$max E(e)=10 MeV, e will pro nps 20+7 prdmp 20+71+520+711+4 print fc18 tally for pulse height in cells 1, f18:e 1 \$pulse height in cells 1, f18:e 1 \$pulse height in cells 1, f18: GEB 1.100000e-02 0.0 0.0 e18 0.04.027219e-03 509i 2.057909 em18 1511r tf18 17r</pre>	nodela, fizika interakcije čestica, roj istorija/* duce p */definisan zadatak modela /* */definisana rezolucijadetektora/* */amplitudska raspodela/*

106- c end data section

#### Прилог Б

MCNP модел PD450-15-500AM PIPS детектора и 3ml воде у Petri шољи (за електроне конверзије 137т Ва) Model of PD450-15-500AM detector and small bottle with water (Ba137m e-) Cell cards /\* U modelu se definišu ćelije detektora: indeks ćelije, indeks с materijala i ukupna atomska frakcija u određenom materijalu /\* 1 1 4.996030e-02 -1 2 -3 vol=2.25890e-01 **\$ PIPS detector** 2 5.900867e-02 -1 9 -8 \$ Au layer 2 5 6.023807e-02 -1 4 -5 3 \$ Al window 1 4.996030e-02 -7 9 -5 #1 #2 #3 \$ Si crystal 4 5 3 4.964002e-05 -1 5 -12 **\$** Air window 3 4.964002e-05 7 -6 9 -5 6 \$ Air gap 3 4.964002e-05 10 -6 11 -9 7 \$ Air in detector shield 4 8.526221e-02 -13 14 -12 8 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7 **\$ Detector shield** 6 1.000800E-01 -15 17 -18 9 \$ Source (h2o) \*/ ćelije 10 3 4.964002e-05 -15 170 -17 **\$** Source air detektora/\* 7 1.152720e-01 -16 23 -24 #9 #10 11 **\$** Source housing 5 6.023807e-02 19 -20 21 -22 24 -25 12 **\$** Al-holder (upper) 5 6.023807e-02 19 -20 21 -22 26 -260 \$ Al-holder (lower) 13 14 5 6.023807e-02 27 -20 21 -22 25 -26 \$ Al-holder (side) 15 3 4.964002e-05 -28 19 -29 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7 #8 #9 #10 #11 #12 #13 #14 **\$** Air in box 4 8.526221e-02 28 - 30 19 - 29 \$ Radial wall of box 16 4 8.526221e-02 -30 31 -19 **\$ Back wall of box** 17 4 8.526221e-02 -30 29 -32 \$ Door of box 18 0 30:-31:32 \$ Void 19

c Surface cards

- Surface cards /\* Karta površina u kojoj se definišu površine u xzy koordinatnom sistemu kojima su definisane ćelije detektora\*/

1	cz	1.1968
2	pz	-0.050207
3	pz	-0.000007 \$ 0.05 ćm of Si
4	pz	-0.000002 \$ 0.02 ćm (200 A) of Al window
5	pz	0.0000
6	cz	1.4750
7	cz	1.2450
8	pz	-0.050212 \$ 0.05 ćm of Si
9	pz	-0.052212 \$ 20 ćm of Au
10	cz	0.2500
11	pz	-1.0300
12	pz	0.1000
13	cz	1.5750
14	pz	-1.1300
15	cz	1.725431
16	cz	1.841
170	pz	0.202
17	pz	0.778043
18	pz	1.0988
19	px	-5.10
20	px	2.60
21	ру	-1.92
22	ру	1.92
23	pz	0.200
24	pz	1.1473
25	pz	1.45
26	pz	3.35
260	pz	3.65
27	px	2.30
28	c/x	0.0000 2.9650 6.6550

29 px 5.10
30 c/x 0.0000 2.9650 7.3750
31 px -5.75

32 px 5.75

Data cards /\*Karta podataka u kojoj se definiše biblioteka nuklearnih podataka i materijali detektora (atomske frakcije sastavnih elemenata materijala)\*/ c MCNP Library: el03

m1	estep=15	
	14000.03e 4.996030e-02 \$ si	/* Silicijum/*
c	Au-contact	
m2	estep=15	
	79000.03e 5.900867e-02 \$ au	*/Zlato (konektor)/*
c	Dry air	
m3	estep=15	
	6000.03e 8.015400e-09 \$ air	
	7014.03e 3.912200e-05	*/vazduh/*
	8016.03e 1.051000e-05	
c	SS-housing	
m4	24000.03e 1.565292e-02 \$ ss-304	
	25055.03e 1.307181e-03	
	26000.03e 5.551006e-02	*/ čelično kućište detektora/*
	28000.03e 1.141974e-02	
	42000.03e 1.372305e-03	
c	Al-holder	
m5	13027.03e 6.023807e-02 \$ al	*/aluminijumki držač/*
c	Water at 22.4 C, rho=0.997679 g/cm3	*/voda/*
m6	1001.03e 6.672000e-02	
	8016.03e 3.336000e-02	
c	Nylon (C12H22N202), density = 1.14 g/cm3	*/ najlonska folija/*
m7	1001.03e 0.066737 \$ nylon	
	6000.03e 0.036401	

7014.03e 0.006067

8016.03e 0.006067

# c Source definition (1Bq of Cs137 -> 0.944 Ba-137m electrons) /\* Deo modela koji definiše karakteristike izvora: položaj, radijus, vrstu emitovanog zračenja i energetsku raspodelu i aktivnost izvora \*/

sdef cel=9 par=3 erg=d1 rad=d2 ext=d3 axs=0 0 1 pos=d4 wgt=0.090435				
si1 L 0.624216 0.655668	*/Energija elektrona konverzije i verovatnoća emisije/*			
sp1 D 0.076653 0.013782				
si2 0.00 1.725431	*/definisan radijus i distribucija izvora*/			
sp2 -21 1				
si3 0.000 0.320757				
sp3 -21 0				
si4 L 0.00 0.0000 0.778043	*/polozaj izvora/*			
sp4 D 1.00				
imp:e 1 17r 0				
mode e \$ electron problem				
phys:e 10.0 0 0 0 0 1 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV	, e will produce p			
nps 5+8				
prdmp 5+8 1+5 5+8 1 1+4				
print				
fc18 tally for pulse height in cells 1,	*/definisan zadatak modela /*			
f18:e 1 \$ pulse height in cells 1,				
ft18 GEB 1.100000e-02 0.0 0.0	*/definisana rezolucija detektora/*			
e18 0.0 4.027219e-03 509i 2.057909	*/amplitudska raspodela/*			
em18 1 511r				
tf18 1 7r				
c end data section				

#### Прилог Ц

MCNP модел PD450-15-500AM детектора и филтер папира монитора AMS4 (за бета честице <sup>90</sup>Y)

Model of PD450-15-500AM detector and ams4fp (Y90 beta)

## - c Cell cards /\* U modelu se definišu ćelije detektora: indeks ćelije, indeks materijala i ukupna atomska frakcija u određenom materijalu /\*

1	1 4.996030e-02	-1 2 -3 vol=2.25890e-01	\$ PIPS detect	or
2	2 5.900867e-02	-1 9 -8	\$ Au layer	
3	5 6.023807e-02	-1 4 -5	\$ Al window	
4	1 4.996030e-02	-7 9 -5 #1 #2 #3	\$ Si crystal	
5	3 4.964002e-05	-1 5 -12	\$ Air window	,
6	3 4.964002e-05	7 -6 9 -5	\$ Air gap	
7	3 4.964002e-05	10 -6 11 -9	\$ Air in detec	tor shield
8	4 8.526221e-02 -	13 14 -12  #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7	\$ Detector shi	eld
9 10	6 2.697330E-02 7 1.152720e-01	-15 17 -18 -16 23 -230 #9	\$ Source (am \$ Source hous	s4fp) sing
11	5 6.023807e-02	19 -20 21 -22 24 -25	\$ Al-holder (1	ipper)
12	5 6.023807e-02	19 -20 21 -22 26 -260	\$ Al-holder (l	ower)
13	5 6.023807e-02	27 -20 21 -22 25 -26	\$ Al-holder (s	ide)
14	3 4.964002e-05	-28 19 -29 #1 #2 #3 #4 #5 #6		*/ ćelije
	#7 #8	#9 #10 #11 #12 #13	\$ Air in box	detektora/*
15	4 8.526221e-02	28 -30 19 -29	\$ Radial wall	of box
16	4 8.526221e-02	-30 31 -19	\$ Back wall o	f box
17	4 8.526221e-02	-30 29 -32	\$ Door of box	Σ.
18	0 30:-	31:32	\$ Void	

- c Surface cards /\* Karta površina u kojoj se definišu površine u xzy koordinatnom sistemu kojima su definisane ćelije detektora\*/
- 1 cz 1.1968
- 2 pz -0.050207
- 3 pz -0.000007 \*/**\$ 0.05 ćm of Si/\***
- 4 pz -0.000002 \*/\$ 0.02 ćm (200 A) of Al window/\*

5	pz	0.0000	
6	cz	1.4750	
7	cz	1.2450	
8	pz	-0.050212	*/\$ 0.05 ćm of Si/*
9	pz	-0.052212	*/\$ 20 ćm of Au/*
10	cz	0.2500	
11	pz	-1.0300	
12	pz	0.1000	
13	cz	1.5750	
14	pz	-1.1300	
15	cz	2.15	
16	cz	2.35	
17	pz	0.202	
18	pz	0.227	
19	рх	-5.10	
20	рх	2.60	
21	ру	-1.92	
22	ру	1.92	
23	pz	0.200	
230	pz	0.327	
24	pz	1.470	
25	pz	1.75	
26	pz	3.65	
260	pz	3.95	
27	рх	2.30	
28	c/x	0.0000 2.9650 6.6550	
29	рх	5.10	
30	c/x	0.0000 2.9650 7.3750	
31	px	-5.75	
32	рх	5.75	

Data cards /\*Karta podataka u kojoj se definiše biblioteka nuklearnih podataka i materijali detektora (atomske frakcije sastavnih elemenata materijala)\*/

c	MCNP Library: el03	
m1	estep=15	
	14000.03e 4.996030e-02 \$ si	*/Silicijum/*
c	Au-contact	
m2	estep=15	
	79000.03e 5.900867e-02 \$ au	*/Zlato (konektor)/*
c	Dry air	
m3	estep=15	
	6000.03e 8.015400e-09 \$ air	
	7014.03e 3.912200e-05	*/Vazduh/*
	8016.03e 1.051000e-05	
c	SS-housing	
m4	24000.03e 1.565292e-02 \$ ss-304	
	25055.03e 1.307181e-03	*/Čelično kućište/*
	26000.03e 5.551006e-02	
	28000.03e 1.141974e-02	
	42000.03e 1.372305e-03	
c	Al-holder	
m5	13027.03e 6.023807e-02 \$ al	
c	Ams4 filter paper, rho=0.35 g/cm3	*/Aluminijumski držač/*
m6	1001.03e 1.284400e-02	
	6000.03e 7.707000e-03	
	8016.03e 6.422300e-03	
c	Nylon (C12H22N202), density = 1.14 g/cm3	*/Najlonska folija/*
m7	1001.03e 0.066737 \$ nylon	
	6000.03e 0.036401	
	7014.03e 0.006067	
	8016.03e 0.006067	

Source definition (1Bq of Y-90 -> 1 beta) /\* Deo modela koji definiše С karakteristike izvora: položaj, radijus, vrstu emitovanog zračenja i energetsku raspodelu i aktivnost izvora \*/ sdef cel=9 par=3 erg=d1 rad=d2 ext=d3 axs=0 0 1 pos=d4 wgt=1.0 si1 H 0.0001 0.1142 0.2284 0.3426 0.4568 0.5710 0.6852 0.7994 0.9136 1.0278 1.1420 1.2562 1.3704 1.4846 1.5988 /\*Energetska distribucija e- Y-90/\* 1.7130 1.8272 1.9414 2.0556 2.1698 2.2840 sp1 D 0.00E+00 4.26E-02 5.18E-02 5.94E-02 6.49E-02 6.86E-02 7.08E-02 7.17E-02 7.15E-02 7.04E-02 6.85E-02 6.57E-02 6.19E-02 5.69E-02 5.07E-02 4.30E-02 3.42E-02 2.46E-02 1.50E-02 6.43E-03 1.13E-03 si2 0.00 2.15 \*/definisan radijus i distribucija izvora\*/ sp2 -21 1 si3 0.000 0.025 sp3 -210 si4 L 0.00 0.0000 0.202 \*/definisan položaj izvora/\* sp4 D 1.00 imp:e 116r0 \$ electron problem mode e phys:e 10.0 0 0 0 1 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will produce p \*/ definisana fizika interakcije e-/\* 5+8 nps prdmp 5+8 1+5 5+8 1 1+4 fc18 tally for pulse height in cells 1, f18:e 1 \$ pulse height in cells 1, \*/definisan zadatak modela /\* ft18 GEB 1.100000e-02 0.0 0.0 \*/ definisana rezolucija detektora/\* 0.0 4.027219e-03 509i 2.057909 \*/amplitudska raspodela/\* e18 em18 1511r

tf18 17r

#### Прилог Д

Програм за LSI решавање активности радионуклида који је дефинисан MCNP функцијом одзива и измереном амплитудском расподелом PIPS детектора PD450-15-500AM

- c program for LSI solution of nuclide activity defined
- c by MCNP response function and measured amplitde distribution

```
c by PIPS detector PD450-15-500AM
```

c-----

```
C----
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   parameter (mde=512,mn=10,mlsi=20)
   dimension name(20),ee(mde),pips(mde),rf(mde,mn)
   dimension e(mde,mn),f(mde),spe(mde,mn)
   dimension g(mlsi,mn),h(mlsi),x(mn)
с
   open(unit=1,file='pdlsi.inp',status='old')
   open(unit=2,file='pdlsi.out',status='new')
с
1010 format(20a4)
1020 format(9i8)
1030 format(6e12.4)
1040 format(/3x,'Insert lower channel (1-512):
                                                 '.$)
1050 format(/3x,'Insert upper channel (1-512):
                                                  ',$)
1060 format(/3x,'Insert sample weight [g]:
                                                ',$)
с
   write(*,1040)
   read(*,*) nl
   write(*,1050)
   read(*,*) nu
   write(*,1060)
   read(*,*) w
с
   read(1,1010) (name(k),k=1,20)
   read(1,1020) nch,nuc
   read(1,1030) tm
   read(1,1010) (name(k),k=1,20)
   read(1,1030) (ee(i),i=1,nch)
   do 20 j=1,nuc
   read(1,1010) (name(k),k=1,20)
   read(1,1030) (rf(i,j),i=1,nch)
   ii=0
   do 10 i=1,nch
   if(i.lt.nl) go to 10
   if(i.gt.nu) go to 10
   ii=ii+1
   e(ii,j)=rf(i,j)
  10 continue
```

```
20 continue
  read(1,1010) (name(k),k=1,20)
  ii=0
  do 30 i=1,nch
  read(1,1020) mca
  if(i.lt.nl) go to 30
  if(i.gt.nu) go to 30
  ii=ii+1
  f(ii)=float(mca)
  pips(i)=float(mca)
30 continue
  n2=ii
  do 50 i=1,nuc
  do 40 j=1,nuc
  g(i,j)=0.0
40 continue
  g(i,i)=1.0
  h(i)=0.0
50 continue
  n1=nuc
  call lsi0(nuc,n2,n1,e,f,g,h,x,mode,res)
  write(*,*) mode
  do 60 j=1,nuc
  x(j)=x(j)/(w*tm)
60 continue
  write(*,*) (x(j),j=1,nuc)
  write(2,2010) nuc
  write(2,2020)
  do 70 j=1,nuc
  write(2,2030) j,x(j)
70 continue
  do 100 j=1,nuc
  act=x(j)
  do 80 i=1,nch
  spe(i,j)=w*tm*act*rf(i,j)
80 continue
  write(2,2040) j
  do 90 i=1,nch
  e1=ee(i)
  e2=ee(i+1)
  sp1=spe(i,j)
  write(2,2050) e1,sp1
  write(2,2050) e2,sp1
90 continue
100 continue
  write(2,2060)
  do 120 i=1,nch
  e1=ee(i)
  e2=ee(i+1)
  sp1=0.0
  do 110 j=1,nuc
  sp1=sp1+spe(i,j)
110 continue
```

```
write(2,2050) e1,sp1
   write(2,2050) e2,sp1
 120 continue
   write(2,2070)
   do 130 i=1,nch
   e1=ee(i)
   e2=ee(i+1)
   sp1=pips(i)
   write(2,2050) e1,sp1
   write(2,2050) e2,sp1
 130 continue
с
2010 format(/3x,'Number of identified radionuclides:',i5)
2020 format(/3x,'Nuclide Activity',
  1
        /3x,'
                 [Bq/g]')
2030 format(i7,3x,1pe12.4)
2040 format(/3x,'Nuclide:',i5)
2050 format( 3x,1p6e12.4)
2060 format(/3x,'Results of calculation for All nuclides')
2070 format(/3x,'Results of measurement')
с
   close(1)
   close(2)
   end
   subroutine lsi0(n,me,mg,e,f,g,h,x,mode,res)
c-----
    za linearnu metodu najmanjih kvadrata lsi
С
    sa linearnim ogranicenjima.
С
С
    minimizira [e*x - f]
С
с
    uz uslov [g*x - h].ge.0
    referenca:
С
    c.l. lawson, r.j. hanson
С
    "solving least squares", prentice-hall,
С
    n.y., 1974.
С
c-----
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   parameter (mde=512,nd=10,mdg=20)
   dimension index(mdg)
   dimension e(mde,1),f(1),g(mdg,1),h(1)
   dimension g2(mdg,nd),h2(mdg),x(1),z(nd)
   dimension s(400),wldp(800)
с
   call svdrs(e,mde,me,n,f,1,1,s)
   do 20 i=1,mg
   do 20 j=1,n
   sm=0.0
   do 10 l=1,n
  10 \text{ sm}=\text{sm}+g(i,l)*e(l,j)
 20 \text{ g2}(i,j)=\text{sm/s}(j)
   do 40 i=1,mg
```

```
sm=0.0
   do 30 j=1,n
 30 sm=sm+g2(i,j)*f(j)
 40 h2(i)=h(i)-sm
с
   call ldp(g2,mdg,mg,n,h2,z,znorm,wldp,index,mode)
   do 50 j=1,n
 50 z(j)=(z(j)+f(j))/s(j)
   do 70 i=1.n
   sm=0.0
   do 60 j=1,n
 60 sm=sm+e(i,j)*z(j)
 70 x(i)=sm
   res=znorm**2
   np1=n+1
   do 80 i=np1,me
 80 res=res+f(i)**2
   res=dsqrt(res)
   return
   end
   subroutine ldp(g,mdg,m,n,h,x,xnorm,w,index,mode)
c-----
   metoda njmanjih kvadrata sa zadatim ogranicenjima.
с
c-----
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   dimension index(1)
   dimension g(mdg,1),h(1),x(1),w(1)
с
   zero=0.0
   one=1.0
   if(n.le.0) go to 120
   do 10 j=1,n
  10 x(j)=zero
   xnorm=zero
   if(m.le.0) go to 110
   iw=0
   do 30 j=1,m
   do 20 i=1,n
```

```
iw=iw+1
20 w(iw)=g(j,i)
iw=iw+1
30 w(iw)=h(j)
iv=iw+1
do 40 i=1,n
iw=iw+1
40 w(iw)=zero
w(iw+1)=one
```

```
np1=n+1
iz=iw+2
iy=iz+np1
iwdual=iy+m
```

с

```
call nnls(w,np1,np1,m,w(iv),w(iy),rnorm,
          w(iwdual),w(iz),index,mode)
   1
   if(mode.ne.1) return
   if(rnorm) 130,130,50
 50 fc=one
   iw=iy-1
   do 60 i=1,m
   iw=iw+1
  60 \text{ fc}=\text{fc}-h(i)*w(iw)
   if(diff(one+fc,one)) 130,130,70
 70 fc=one/fc
   do 90 j=1,n
   iw=iy-1
   do 80 i=1,m
   iw=iw+1
 80 x(j)=x(j)+g(i,j)*w(iw)
 90 x(j)=x(j)*fc
   do 100 j=1,n
 100 xnorm=xnorm+x(j)**2
   xnorm=dsqrt(xnorm)
с
 110 mode=1
   return
 120 \text{ mode}=2
   return
 130 mode=3
   return
   end
   subroutine svdrs(a,mda,mm,nn,b,mdb,nb,s)
c-----
c vrsi singularnu dekompoziciju matrice.
c-----
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   dimension a(mda,1),b(mdb,1),s(mda,1)
с
   zero=0.0
   one=1.0
   n=nn
   if(n.le.0.or.mm.le.0) return
   j=n
  10 continue
   do 20 i=1,mm
   if(a(i,j)) 50,20,50
 20 continue
   if(j.eq.n) go to 40
   do 30 i=1,mm
 30 a(i,j) = a(i,n)
 40 continue
   a(1,n)=j
   n=n-1
 50 continue
   j=j-1
```

if(j.ge.1) go to 10 с ns=0 if(n.eq.0) go to 240 i=1 m=mm 60 continue if(i.gt.n.or.i.ge.m) go to 150 if(a(i,i)) 90,70,90 70 continue do 80 j=1,n if(a(i,j)) 90,80,90 80 continue go to 100 90 i=i+1 go to 60 100 continue if(nb.le.0) go to 115 do 110 j=1,nb t=b(i,j)b(i,j)=b(m,j)110 b(m,j)=t 115 continue do 120 j=1,n 120 a(i,j)=a(m,j) if(m.gt.n) go to 140 do 130 j=1,n 130 a(m,j)=zero 140 continue m=m-1go to 60 150 continue с l=min0(m,n) do 170 j=1,1 if(j.ge.m) go to 160 call h12(1,j,j+1,m,a(1,j),1,t,a(1,j+1),1,mda,n-j) call h12(2,j,j+1,m,a(1,j),1,t,b,1,mdb,nb) 160 continue if(j.ge.n-1) go to 170 call h12(1,j+1,j+2,n,a(j,1),mda,s(j,3),a(j+1,1),mda,1,m-j)170 continue if(n.eq.1) go to 190 do 180 j=2,n s(j,1)=a(j,j)180 s(j,2)=a(j-1,j) 190 s(1,1)=a(1,1) с ns=n if(m.ge.n) go to 200 ns=m+1s(ns,1)=zero s(ns,2)=a(m,m+1)

```
200 continue
   do 230 k=1,n
   i=n+1-k
   if(i.ge.n-1) go to 210
   call h12(2,i+1,i+2,n,a(i,1),mda,s(i,3),a(1,i+1),1,mda,n-i)
 210 continue
   do 220 j=1,n
 220 a(i,j)=zero
 230 a(i,i)=one
с
   call qrbd(ipass,s(1,1),s(1,2),ns,a,mda,n,b,mdb,nb)
   go to (240,310), ipass
 240 continue
   if(ns.ge.n) go to 260
   nsp1=ns+1
   do 250 j=nsp1,n
 250 s(j,1)=zero
 260 continue
   if(n.eq.nn) return
   np1=n+1
с
   do 280 j=np1,nn
   s(j,1)=a(1,j)
   do 270 i=1,n
 270 a(i,j)=zero
 280 continue
   do 300 k=np1,nn
   i=s(k,1)
   s(k,1)=zero
   do 290 j=1,nn
   a(k,j)=a(i,j)
 290 a(i,j)=zero
   a(i,k)=one
 300 continue
   return
 310 write(6,320)
   write(*,320)
   stop
 320 format(/5x,'greska u konvergenciji svd modula')
   end
   subroutine qrbd(ipass,q,e,nn,v,mdv,nrv,c,mdc,ncc)
c-----
c modul za mnozenje rotacionih matrica.
c-----
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   logical wntv, havers, fail
   dimension q(1),e(1),v(mdv,1),c(mdc,1)
```

zero=0.0 one=1.0 two=2.0 n=nn

с

```
ipass=1
  if(n.le.0) return
  n10=10*n
  wntv=nrv.gt.0
  havers=ncc.gt.0
  fail=.false.
  nqrs=0
  e(1)=zero
  dnorm=zero
  do 10 j=1,n
10 dnorm=amax1(abs(q(j))+abs(e(j)),dnorm)
  do 200 kk=1,n
  k=n+1-kk
20 continue
  if(k.eq.1) go to 50
  if(diff(dnorm+q(k),dnorm)) 50,25,50
25 cs=zero
  sn=-one
  do 40 ii=2.k
  i=k+1-ii
  f=-sn*e(i+1)
  e(i+1)=cs*e(i+1)
  call g1(q(i),f,cs,sn,q(i))
  if(.not.wntv) go to 40
  do 30 j=1,nrv
30 call g2(cs,sn,v(j,i),v(j,k))
40 continue
50 continue
  do 60 ll=1,k
  l=k+1-ll
  if(diff(dnorm+e(l),dnorm)) 55,100,55
55 continue
  if(diff(dnorm+q(l-1),dnorm)) 60,70,60
60 continue
  go to 100
70 cs=zero
  sn=-one
  do 90 i=1,k
  f=-sn*e(i)
  e(i)=cs*e(i)
  if(diff(dnorm+f,dnorm)) 75,100,75
75 call g1(q(i),f,cs,sn,q(i))
  if(.not.havers) go to 90
  do 80 j=1,ncc
80 call g2(cs,sn,c(i,j),c(l-1,j))
90 continue
100 \ z = q(k)
  if(l.eq.k) go to 170
  x=q(1)
  y=q(k-1)
  g=e(k-1)
  h=e(k)
  f=((y-z)*(y+z)+(g-h)*(g+h))/(two*h*y)
```

```
g=dsqrt(one+f**2)
  if(f.lt.zero) go to 110
  t=f+g
  go to 120
110 t=f-g
120 f = ((x-z)*(x+z)+h*(y/t-h))/x
  cs=one
  sn=one
  lp1=l+1
  do 160 i=lp1,k
  g=e(i)
  y=q(i)
  h=sn*g
  g=cs*g
  call g1(f,h,cs,sn,e(i-1))
  f=x*cs+g*sn
  g=-x*sn+g*cs
  h=y*sn
  y=y*cs
  if(.not.wntv) go to 140
  do 130 j=1,nrv
130 call g2(cs,sn,v(j,i-1),v(j,i))
140 call g1(f,h,cs,sn,q(i-1))
  f=cs*g+sn*y
  x=-sn*g+cs*y
  if(.not.havers) go to 160
  do 150 j=1,ncc
150 call g2(cs,sn,c(i-1,j),c(i,j))
160 continue
  e(l)=zero
  e(k)=f
  q(k)=x
  nqrs=nqrs+1
  if(nqrs.le.n10) go to 20
  fail=.true.
170 continue
  if(z.ge.zero) go to 190
  q(k) = -z
  if(.not.wntv) go to 190
  do 180 j=1,nrv
180 v(j,k) = -v(j,k)
190 continue
200 continue
  if(n.eq.1) return
  do 210 i=2,n
  if(q(i).gt.q(i-1)) go to 220
210 continue
  if(fail) ipass=2
  return
220 continue
  do 270 i=2,n
  t=q(i-1)
  k=i-1
```
```
do 230 j=i,n
   if(t.ge.q(j)) go to 230
   t=q(j)
   k=j
 230 continue
   if(k.eq.i-1) go to 270
   q(k)=q(i-1)
   q(i-1)=t
   if(.not.havers) go to 250
   do 240 j=1,ncc
   t=c(i-1,j)
   c(i-1,j)=c(k,j)
 240 c(k,j)=t
 250 continue
   if(.not.wntv) go to 270
   do 260 j=1,nrv
   t=v(j,i-1)
   v(j,i-1)=v(j,k)
 260 v(j,k)=t
 270 continue
   if(fail) ipass=2
   return
   end
   subroutine nnls(a,mda,m,n,b,x,rnorm,w,zz,index,mode)
c-----
   nnls metoda najmanjih kvadrata za pozitivne
с
    vrednosti trazenih koeficijenata.
с
   za datu matricu a dimensija m * n i vektor b
С
    dimenzija m odredjuje vektor x dimenzija n
С
С
    resavanjem problema
             a * x = b (za x.gt.0)
С
          - sadrzi m * n ulaznu matricu a.
    a()
С
          (ne cuva se u toku rada programa).
С
          - sadrzi ulazni vektor b dimenzije m.
С
    b()
          (ne cuva se u toku rada programa).
С
    x()
          - vektor resenja.
С
            - 1 zadovoljavajuce resenje.
с
    mode
    mode
            - 2 dimenzije problema su lose
с
            (m.le.0 ili n.le.0).
С
            - 3 itercije nisu postignute
    mode
С
            (vise od 3*n iteracija).
С
c-----
                                  _____
   implicit real*8 (a-h,o-z)
```

```
dimension index(1)
dimension a(mda,1),b(1),x(1),w(1),zz(1)
zero=0.0
one=1.0
two=2.0
factor=0.01
```

```
mode=1
   if(m.gt.0.and.n.gt.0) go to 10
   mode=2
   return
  10 iter=0
   itmax=3*n
   do 20 i=1,n
   x(i)=zero
 20 index(i)=i
   iz1=1
   iz2=n
   nsetp=0
   npp1=1
c */pocetak glavne petlje. prekida se kada nadju resenja
    koeficijenata ili kada m kolona matrice a() dobije
С
    trougaonog oblik. /*
С
 30 continue
   if(iz1.gt.iz2.or.nsetp.ge.m) go to 350
   do 50 iz=iz1,iz2
   j=index(iz)
   sm=zero
   do 40 l=npp1,m
 40 sm=sm+a(1,j)*b(1)
 50 w(j)=sm
 60 wmax=zero
   do 70 iz=iz1,iz2
   j=index(iz)
   if(w(j).le.wmax) go to 70
   wmax=w(j)
   izmax=iz
  70 continue
   if(wmax) 350,350,80
  80 iz=izmax
   j=index(iz)
   asave=a(npp1,j)
   call h12(1,npp1,npp1+1,m,a(1,j),1,up,dummy,1,1,0)
   unorm=zero
   if(nsetp.eq.0) go to 100
   do 90 l=1,nsetp
 90 unorm=unorm+a(1,j)**2
 100 unorm=dsqrt(unorm)
   if(diff(unorm+abs(a(npp1,j))*factor,unorm)) 130,130,110
 110 continue
   do 120 l=1,m
 120 \text{ zz}(1)=b(1)
   call h12(2,npp1,npp1+1,m,a(1,j),1,up,zz,1,1,1)
   ztest=zz(npp1)/a(npp1,j)
   if(ztest) 130,130,140
 130 a(npp1,j)=asave
   w(j)=zero
   go to 60
 140 continue
```

```
do 150 l=1,m
 150 b(l)=zz(l)
   index(iz)=index(iz1)
   index(iz1)=j
   iz1=iz1+1
   nsetp=npp1
   npp1=npp1+1
   if(iz1.gt.iz2) go to 170
   do 160 jz=iz1,iz2
   jj=index(jz)
 160 call h12(2,nsetp,npp1,m,a(1,j),1,up,a(1,jj),1,mda,1)
 170 continue
   if(nsetp.eq.m) go to 190
   do 180 l=npp1,m
 180 a(1,j)=zero
 190 continue
   w(j)=zero
   resenje sistema jednacina trougaonog oblika.
с
   assign 200 to next
   go to 400
 200 continue
c pocetak sekundarne petlje.
 210 iter=iter+1
   if(iter.le.itmax) go to 220
   mode=3
   write(6,440) itmax
   write(*,440) itmax
   go to 350
 220 continue
   alpha=two
   do 240 ip=1,nsetp
   l=index(ip)
   if(zz(ip)) 230,230,240
 230 \text{ t} = -x(1)/(zz(ip)-x(1))
   if(alpha.le.t) go to 240
   alpha=t
   jj=ip
 240 continue
   if(alpha.eq.two) go to 330
   do 250 ip=1,nsetp
   l=index(ip)
 250 x(l)=x(l)+alpha*(zz(ip)-x(l))
   i=index(jj)
 260 x(i)=zero
   if(jj.eq.nsetp) go to 290
   jj=jj+1
   do 280 j=jj,nsetp
   ii=index(j)
   index(j-1)=ii
   call g1(a(j-1,ii),a(j,ii),cc,ss,a(j-1,ii))
   a(j,ii)=zero
   do 270 l=1,n
   if(l.ne.ii) call g2(cc,ss,a(j-1,l),a(j,l))
```

```
270 continue
 280 call g2(cc,ss,b(j-1),b(j))
 290 npp1=nsetp
   nsetp=nsetp-1
   iz1=iz1-1
   index(iz1)=i
   do 300 jj=1,nsetp
   i=index(jj)
   if(x(i)) 260,260,300
 300 continue
   do 310 i=1,m
 310 zz(i)=b(i)
   assign 320 to next
   go to 400
 320 continue
   go to 210
c kraj sekundarne petlje.
 330 continue
   do 340 ip=1,nsetp
   i=index(ip)
 340 x(i)=zz(ip)
   go to 30
  kraj glavne petlje.
с
 350 sm=zero
   if(npp1.gt.m) go to 370
   do 360 i=npp1,m
 360 sm=sm+b(i)**2
   go to 390
 370 continue
   do 380 j=1,n
 380 w(j)=zero
 390 rnorm=dsqrt(sm)
   return
 400 continue
   do 430 l=1,nsetp
   ip=nsetp+1-1
   if(l.eq.1) go to 420
   do 410 ii=1,ip
 410 zz(ii)=zz(ii)-a(ii,jj)*zz(ip+1)
 420 jj=index(ip)
 430 zz(ip)=zz(ip)/a(ip,jj)
   go to next, (200,320)
 440 format(/5x,'broj iteracija veci od itmax=',i4)
   end
   subroutine h12(mode,lpivot,l1,m,u,iue,up,c,ice,icv,ncv)
c-----
    izvodi ili koristi transformaciju oblika
С
```

- c  $q = i + u^{*}(u^{**}t)/b$
- c mode 1 ili 2 za izbor algoritma h1 ili h2.
- c lpivot indeks pivot elementa.
- c l1,m za l1.le.m vrsi se pomenuta transformacija,

```
a za l1.gt.m se ova transformacija koristi.
С
с
     c()
              - ulazna matrica koju treba transformisati.
               na kraju u ovu matricu se smesta
С
               transformisana matrica.
С
c-
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   dimension u(iue,1),c(1)
   one=1.0
   if(0.ge.lpivot.or.lpivot.ge.l1.or.l1.gt.m) return
   cl=abs(u(1,lpivot))
   if(mode.eq.2) go to 60
c izvodjenje transformacije.
   do 10 j=11,m
  10 \text{ cl}=amax1(abs(u(1,j)),cl)
   if(cl) 130,130,20
  20 clinv=one/cl
   sm=(dble(u(1,lpivot))*clinv)**2
       dble pretvara broj iz real*4 u real*8 format.
с
   do 30 j=11,m
  30 \text{ sm}=\text{sm}+(\text{dble}(u(1,j))*\text{clinv})**2
   sm1=sm
   cl=cl*dsqrt(sm1)
   if(u(1,lpivot)) 50,50,40
  40 \text{ cl}=-\text{cl}
  50 up=u(1,lpivot)-cl
   u(1,lpivot)=cl
   go to 70
c koriscenje transformacije i+u^*(u^{**}t)/b na c.
  60 continue
   if(cl) 130,130,70
  70 continue
   if(ncv.le.0) return
   b=dble(up)*u(1,lpivot)
   if(b) 80,130,130
  80 b=one/b
   i2=1-icv+ice*(lpivot-1)
   incr=ice*(11-lpivot)
   do 120 j=1,ncv
   i2=i2+icv
```

i3=i2+incr i4=i3

90 i3=i3+ice

100 sm=sm\*b

110 i4=i4+ice 120 continue

do 110 i=11,m

sm=c(i2)\*dble(up) do 90 i=l1,m

if(sm) 100,120,100

sm=sm+c(i3)\*dble(u(1,i))

c(i2)=c(i2)+sm\*dble(up)

c(i4)=c(i4)+sm\*dble(u(1,i))

141

```
130 return
end
subroutine g1(a,b,cs,sn,sig)
c------
```

```
izracunava ortogonalnu rotacionu
С
с
    matricu (c,s) tako da je
         (c,s) (a) = (sqrt(a^{**}2+b^{**}2))
С
         (-s,c)(b) = (0)
С
                              )
                = sqrt(a**2+b**2)
С
         sig
c-----
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   zero=0.0
   one=1.0
   if(abs(a).le.abs(b)) go to 10
   xr=b/a
   yr=dsqrt(one+xr**2)
   cs=sign(one/yr,a)
   sn=cs*xr
   sig=abs(a)*yr
   return
 10 continue
   if(b) 20.30.20
 20 \text{ xr}=a/b
   yr=dsqrt(one+xr**2)
   sn=sign(one/yr,b)
   cs=sn*xr
   sig=abs(b)*yr
   return
 30 sig=zero
   cs=zero
   sn=one
   return
   end
   subroutine g2(cs,sn,x,y)
c-----
С
  vrsi rotaciju.
c-----
   implicit real*8 (a-h,o-z)
   xr=cs*x+sn*y
   y=-sn*x+cs*y
   x=xr
   return
   end
```

```
function diff(x,y)
pravi razliku x-y radi izbegavanja
numerickih gresaka u komandi if
implicit real*8 (a-h,o-z)
diff=x-y
return
```

end

### Прилог Е

MCNP модел HP210T сонде за нумеричку калибрацију ефикасности за стандардни извор зрачења <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y радијуса 2.03cm.

#### HP-210T Pancake Probe (gas thickness = 9mm, 2MPa, mica=0.0006cm), rad=2.03cm

- c Cell cards /\* U modelu se definišu ćelije detektora: indeks ćelije, indeks materijala i ukupna atomska frakcija u određenom materijalu /\*

1 1 5.003110E-5	-1 2 -3 vol=1.76715E	t+01 imp:e=1	\$ fill gas
2 2 9.567127E-2 -	-100 3 -4	imp:e=1	\$ mica mindow
3 3 4.964002E-5	-100 4 -5	imp:e=1	\$ air window
4 4 8.526221E-2	-6 7 -5 #1 #2 #3	imp:e=1	\$ ss steel cas
5 3 4.964002E-5	8 -9 10 -11 u	=2 imp:e=1	\$ air mesh win
6 4 8.526221E-2	-8:9:-10:11 u	=2 imp:e=1	\$ ss steel mesh
7 0 12 -13 1	4 -15 16 -17 lat=1 fill=2	u=1 imp:e=1	\$ mesh lattice
8 0 -1 5 -	18 fill=1 imp	:e=1 \$ mesh	*/ ćelije detektora/*
9 4 8.526221E-2	1 -21 5 -18	imp:e=1	\$ ss steel ring
10 3 4.964002E-5	-1 18 -19	imp:e=1	\$air window
11 3 4.964002E-5	6 -20 7 -5	imp:e=1	\$air window
12 5 6.023807E-2	1 -21 18 -19	imp:e=1	\$al ring
13 6 6.322201E-2	20 -21 7 -5	imp:e=1	\$tungsten rad
14 6 6.322201E-2	-21 22 -7	imp:e=1	\$tungsten
15 5 6.023807E-2	21 -23 24 -19	imp:e=1	\$al ring
16 3 4.964002E-5	21 -23 22 -24	imp:e=1	\$ air window
c source			
17 3 4.964002E-5	-101 102 -103	imp:e=1	\$ virtual source
18 5 6.023807E-2	-104 102 -105 #17	imp:e=1	\$ al holder
19 7 1.184900E-1	106 -107 108 -109 102 -	110 #17 #18 imp:e=1	\$ poly holder
20 8 2.374073E-2	119 -120 121 -122 110 -	123 imp:e=1	\$ redwood table
c the RA reactor ro	oom 217		

21 3 4.964002E-5 26 -27 28 -29 19 -30 #17 #18 #19 #20

	imp:e=1		\$air (upper)
22 3 4.964002E-5	23 26 -27 28 -29 22 -19	imp:e=1	\$ air ring
23 3 4.964002E-5	26 -27 28 -29 31 -22	imp:e=1	\$ air (bottom)
c walls			*/ćelije
24 9 7.601000E-2	26 -27 28 -29 30 -32	imp:e=1	<i>laboratorije/*</i> \$ conc. fl
25 9 7.601000E-2	26 - 27 28 - 29 33 - 31	imp:e=1	\$ conc. ceiling
26 9 7.601000E-2	34 -26 36 -37 33 -32	imp:e=1	\$ west wall
27 9 7.601000E-2	27 -35 36 -37 33 -32	imp:e=1	\$ east wall
28 9 7.601000E-2	26 - 27 36 - 28 33 - 32	imp:e=1	\$ south wall
29 9 7.601000E-2	26 - 27 29 - 37 33 - 32	imp:e=1	\$ north wall
30 0 -34:3	35:-36:37:-33:32	imp:e=0	\$ void

# c Surface cards /\* Karta površina u kojoj se definišu površine u xzy koordinatnom sistemu sa kojima su definisane ćelije detektora i prostorije \*/

/\*definisane površine detektora/\*

- 1 cz 2.5000
- 100 cz 2.2300
- 2 pz -1.0706
- 3 pz -0.1706
- 4 pz -0.1700
- 5 pz 0.0000
- 6 cz 2.6500
- 7 pz -1.1206
- 8 px -0.0675
- 9 px 0.0675
- 10 py -0.0675
- 11 py 0.0675
- 12 px -0.0760
- 13 px 0.0760
- 14 py -0.0760
- 15 py 0.0760
- 16 pz -0.0001

17	pz 0.0171	
18	pz 0.0170	
19	pz 0.1690	
20	cz 3.0190	
21	cz 3.7750	
22	pz -2.0260	
23	cz 4.4150	
24	pz -1.6500	
с	walls	*/definisane površine zidova laboratorije /*
26	px -150.0000	
27	px 350.0000	
28	ру -350.0000	
29	ру 65.0000	
30	pz 75.0000	
31	pz -300.0000	
c	concrete walls	
32	pz 115.0000	
33	pz -340.0000	
34	px -190.0000	
35	px 390.0000	
36	ру -390.0000	
37	ру 105.0000	
c	filed of sources	*/definisane površine izvora/*
101	cz 2.0300	
102	pz 0.4490	
103	pz 0.4500	
104	cz 2.4999	
105	pz 0.5300	
106	px -5.5000	
107	px 5.5000	

108py-5.5000109py5.5000110pz3.0000119px-45.0000120px105.0000121py-20.0000122py60.0000123pz5.0000

Data cards /\* Karta podataka u kojoj se definiše biblioteka nuklearnih podataka i materijali detektora (atomske frakcije sastavnih elemenata materijala)\*/ m1 estep=15

10000.03e 5.003110e-05 \$ neon fill gas (2MPa) m2 estep=15 1000.03e 1.356929e-02 \$ mica (2.883g/cm3) 8000.03e 5.305944e-02 11000.03e 1.736773e-04 12000.03e 1.636917e-04 13000.03e 1.127245e-02 14000.03e 1.316781e-02 15000.03e 1.681601e-05 16000.03e 5.414575e-06 19000.03e 3.638399e-03 20000.03e 6.501702e-05 26000.03e 5.392678e-04 m3 estep=15 6000.03e 8.015400e-09 \$ dry air \*/vazduh/\* 7014.03e 3.912200e-05 8016.03e 1.051000e-05 estep=15 m4 24000.03e 1.565292e-02 \$ ss-304 \*/čelilk/\* 25055.03e 1.307181e-03

26000.03e 5.551006e-02

28000.03e 1.141974e-02

42000.03e 1.372305e-03

m5 estep=15

	13027.03e 6.023807e-02 \$ aluminum	/*aluminijum/*
m6	estep=15	
	74000.03e 6.322201e-02 \$ tungsten	*/volfram/*
m7	estep=15	
	1001.03e 7.899000e-02 \$ polyetilene (ch2), rho=0.92g/cm3	*/plastika/*
	6000.03e 3.950000e-02	
m8	estep=15	
	1001.03e 6.783070e-03 \$ Redwood (h6c10o5), rho=0.387g/cm3	*/drvo/*
	6000.03e 1.130510e-02	
	8016.03e 5.652560e-03	
m9	estep=15	
	1001.03e 8.420000e-03 \$ nbs concrete	*/beton/*
	8016.03e 4.423000e-02	
	11000.03e 1.050000e-03	
	13027.03e 2.520000e-03	
	14000.03e 1.587000e-02	
	19000.03e 6.900000e-04	
	20000.03e 2.930000e-03	

c Source definition (1Bq of Sr/Y-90 -> 1 beta) /\* Deo modela koji definiše karakteristike izvora: položaj, radijus, vrstu emitovanog zračenja i energetsku raspodelu i aktivnost izvora \*/

sdef par=3 erg=d1 cel=17 rad=d2 ext=d3 axs=0 0 1 pos=d4 wgt=1.0

26000.03e 3.000000e-04

si1 H 1.00000E-04 5.70250E-02 1.14050E-01 1.71075E-01 2.28100E-01

2.85125E-01 3.42150E-01 3.99175E-01 4.56200E-01 5.13225E-01

5.70250E-01 6.27275E-01 6.84300E-01 7.41325E-01 7.98350E-01

8.55375E-01 9.12400E-01 9.69425E-01 1.02645E+00 1.08347E+00

1.14050E+00 1.19753E+00 1.25455E+00 1.31158E+00	1.36860E+00
1.42562E+00 1.48265E+00 1.53967E+00 1.59670E+00	1.65373E+00
1.71075E+00 1.76777E+00 1.82480E+00 1.88182E+00	1.93885E+00
1.99588E+00 2.05290E+00 2.10993E+00 2.16695E+00	2.22397E+00
2.28100E+00	*/energetska distribucija 90Sr/Y/*
sp1 D 0.00000E+00 1.78557E-01 1.72138E-01 1.69727E-0	1 1.65265E-01
1.57055E-01 1.43046E-01 1.21759E-01 9.36221E-02 6	5.25738E-02
3.80407E-02 3.34347E-02 3.42462E-02 3.44371E-02 3	3.45087E-02
3.44609E-02 3.43178E-02 3.40791E-02 3.37450E-02 3	3.32916E-02
3.27665E-02 3.21222E-02 3.13824E-02 3.05232E-02 2	2.95448E-02
2.84231E-02 2.71583E-02 2.57264E-02 2.41513E-02 2	2.24092E-02
2.05238E-02 1.84953E-02 1.63236E-02 1.40564E-02 1	.17415E-02
9.40278E-03 7.11175E-03 4.94004E-03 3.03084E-03 1	.45576E-03
4.05704E-04	
si2 0.00 2.0300	*/definisan radijus i distribucija izvora*/
sp2 -21 1	
si3 0.00 0.0010	*/definisana visina izvora i distribucija/*
sp3 -21 0	
si4 L 0.00 0.0000 0.4490	*/pozicija izvora/*
sp4 D 1.00	
mode e \$\$ coupled photon & electron problem	
phys:e 10.0 0 0 0 0 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will produce	ce p */zadata fizika interakcije elektrona/*
nps 3+6	
prdmp 3+6 5+4 3+6 1 1+4	
fc28 tally for detector response	*/definisan zadatak modela/*
f28:e 1 \$ detector response	
ft28 GEB 3.000000e-02 0.0 0.0	*/ definisana rezolucija detektora/*
e28 0.0 1.0E-5 2.2840	
c Tally for GM detector response	
tf28 1 7r	

### Прилог Ф

MCNP model of BaSIS (NaI 2x2") for glass plate contaminated with Cs-137, hcs5

- c Cell cards /\* U modelu se definišu ćelije detektora: indeks ćelije, indeks materijala i ukupna atomska frakcija u određenom materijalu /\*

1 1 2.946502E-2 -1 3 -2 vol=1.029630E+2 imp:p=1 \$ NaI detector

2 2 1.069822E-1 1 -4 3 -2	imp:p=1	\$ MgO refl.(rad)
3 2 1.069822E-1 -4 2 -5	imp:p=1	\$ MgO refl.(top)
4 3 6.975884E-2 -4 6 -3	imp:p=1	\$ SiO2 refl.
5 4 6.023807E-2 4 -7 6 -5	imp:p=1	\$ Al (rad)
6 4 6.023807E-2 -7 5 -8	imp:p=1	\$ Al (top)
7 5 2.826436E-2 -4 9 -6	imp:p=1	<b>\$ PMT tube</b>
8 4 6.023807E-2 4 -10 9 -6	imp:p=1	\$ Al PMT (rad)
9 6 4.964002E-5 7 -11 6 -8	imp:p=1	\$ Air hollow (1)
10 6 4.964002E-5 10 -11 9 -6	imp:p=1	\$ Air hollow (2)
c		*/ ćelije detektora/*
11 6 4.964002E-5 -11 8 -12	imp:p=1	\$Colimator h
12 7 8.526221E-2 11 -13 9 -12	imp:p=1	\$ SS inner clad
13 8 3.298808E-2 13 -14 15 -12	imp:p=1	\$ Lead shield
14 7 8.526221E-2 14 -16 15 -12	imp:p=1	\$ SS outer clad
15 6 4.964002E-5 16 -17 18 -12	imp:p=1	\$ Air ring
16 7 8.526221E-2 16 -17 15 -18	imp:p=1	\$ SS holder
17 8 3.298808E-2 13 -19 9 -15	imp:p=1	\$ Lead shield 2
18 7 8.526221E-2 19 -20 9 -15	imp:p=1	\$ SS outer clad
19 6 4.964002E-5 20 -17 9 -15	imp:p=1	\$ Air ring (2)

с

20 6 4.964002E-5 101 -102 103 -104 105 -106 u=3 imp:p=1 \$ field hc1

21	0 -101:102:-103:104:-105:106	u=3 imp:p=1	
22	6 4.964002E-5 107 -108 109 -110 111	-112 fill=3 imp:p=1 \$	\$ field hc1
23	like 22 but trcl ( 6.0 0.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc2	
24	like 22 but trcl (12.0 0.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc3	
25	like 22 but trcl ( 0.0 6.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc4	*/Definisane ćelije izvora:
26	like 22 but trcl ( 6.0 6.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc5	Plexiglas ploča sa 9 jako
27	like 22 but trcl (12.0 6.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc6	kontaminiranih polja <sup>137</sup> Cs /*
28	like 22 but trcl ( 0.0 12.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc7	
29	like 22 but trcl ( 6.0 12.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc8	
30	like 22 but trcl (12.0 12.0 0.0)	imp:p=1 \$ field hc9	
c			
31	like 22 but trcl ( 0.0 18.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc1	
32	like 22 but trcl ( 6.0 18.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc2	
33	like 22 but trcl (12.0 18.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc3	*/Definisane ćelije izvora:
34	like 22 but trcl ( 0.0 24.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc4	Plexiglas ploce sa 9 kontaminiranih polja slabim
35	like 22 but trcl ( 6.0 24.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc5	rastvorom <sup>137</sup> Cs /*
36	like 22 but trcl (12.0 24.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc6	
37	like 22 but trcl ( 0.0 30.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc7	
38	like 22 but trcl ( 6.0 30.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc8	
39	like 22 but trcl (12.0 30.0 0.0)	imp:p=1 \$ field lc9	
с			
40	10 6.878475E-2 113 -114 115 -116 112	2 -117 imp:p=1 \$	glass plate
c	the RA reactor room 217		
41	6 4.964002E-5 26 -27 28 -29 12 -30 #	ŧ22 #23	
	#24 #25 #26 #27 #28 #29 #30 #3	31 #32	
	#33 #34 #35 #36 #37 #38 #39 #4	40 imp:p=1 \$ air (u	pper) */ <b>Definisane ćelije</b>
42	6 4.964002E-5 17 26 -27 28 -29 9 -12	imp:p=1 \$ air 1	ting Laboratorije br 217
43	6 4.964002E-5 26 -27 28 -29 31 -9	imp:p=1 \$ air (b	pottom) reaktora Ka/*
с	walls		
44	9 7.601000E-2 26 -27 28 -29 30 -32	imp:p=1 \$ conc	e. floor

45 9	7.601000E-2	26 - 27 28 - 29 33 - 31	imp:p=1 \$ conc. ceiling	
46 9	7.601000E-2	34 -26 36 -37 33 -32	imp:p=1 \$ west wall	
479	7.601000E-2	27 -35 36 -37 33 -32	imp:p=1 \$ east wall	*/Definisane ćelije Jahoratorije hr 217
48 9	7.601000E-2	26 -27 36 -28 33 -32	imp:p=1 \$ south wall	reaktora Ra/*
499	7.601000E-2	26 -27 29 -37 33 -32	imp:p=1 \$ north wall	
50 0	-34:3	5:-36:37:-33:32	imp:p=0 \$ void	

c Surface cards /\* Karta površina u kojoj se definišu površine u xzy koordinatnom sistemu kojima su definisane ćelije detektora i laboratorije\*/

- 2.540 11 cz 21 pz -0.235 31 pz -5.315 2.725 41 cz -0.050 51 pz 61 pz -5.615 71 cz 2.775 81 pz 0.000 91 pz -25.615 101 cz 2.825 111 cz 3.090 12.1 pz 4.880 131 cz 3.190 141 cz 8.190 151 pz -10.040 161 cz 8.290 171 cz 8.490 181 pz -2.040 191 cz 4.930 201 cz 5.030
- c Walls

\*/definisane površine zidova laboratorije/\*

26 px -250.0000

27	px 250.0000	
28	ру -150.0000	
29	ру 150.0000	
30	pz 0.3100	
31	pz -350.0000	
c	concrete walls	*/ definisane površine zidova laboratorije /*
32	pz 45.0000	
33	pz -390.0000	
34	px -290.0000	
35	px 290.0000	
36	ру -190.0000	
37	ру 190.0000	
c	filed of sources	*/ definisane površine izvora/*
101	px 0.1000	
102	px 5.9000	
103	ру 0.1000	
104	ру 5.9000	
105	pz 0.0010	
106	pz 0.0090	
107	px 0.0000	
108	px 6.0000	
109	ру 0.0000	
110	ру 6.0000	
111	pz 0.0000	
112	pz 0.0100	
c		
113	px -4.0000	
114	px 22.0000	
115	ру -4.0000	
116	ру 40.0000	

117 pz 0.3000

# c Material cards /\* Karta podataka u kojoj se definiše biblioteka nuklearnih podataka i materijali detektora (atomske frakcije sastavnih elemenata materijala)\*/

c	MCNP Library: mcplib2	
c	NaI detector	
m1	estep=15	
	11023.02p 1.473252e-02	*/Natrijum-jodid/*
	53127.02p 1.473252e-02	
c	MgO reflector	
m2	estep=15	
	8016.02p 5.349110e-02	*/Magnezijum-oksid/*
	12000.02p 5.349110e-02	
c	SiO2 reflector	
m3	estep=15	
	8016.02p 4.650589e-02	*/Silicijum-dioksid, reflektor/*
	14000.02p 2.325294e-02	
c	Al-housing	
m4	estep=15	
	13027.02p 6.023807e-02	*/Aluminijumsko kućište/*
c	Homogenized PMT (rho=0.94g/cm3)	
m5	8016.02p 1.884290e-02	
	14000.02p 9.421452e-03	*/Fotomultiplikatorska cev, modelovana kaoSiO2/*
c	Dry air	
mб	6000.02p 8.015400e-09	*/Vazduh/*
	7014.02p 3.912200e-05	
	8016.02p 1.051000e-05	
c	SS-housing	
m7	24000.02p 1.565292e-02 \$ ss-304	*/Čelično kućište/*
	25055.02p 1.307181e-03	
	26000.02p 5.551006e-02	

28000.02p 1.141974e-02

42000.02p 1.372305e-03

c Lead (11.35 g/cm3)

m8	82000.02p 3.298808e-02	*/olovni kolimator/*
c	NBS concrete, rho=2.3 g/cm3	*/beton/*
m9	1001.02p 8.420000e-03	
	8016.02p 4.423000e-02	
	11000.02p 1.050000e-03	
	13027.02p 2.520000e-03	
	14000.02p 1.587000e-02	
	19000.02p 6.900000e-04	
	20000.02p 2.930000e-03	
	26000.02p 3.000000e-04	
с	Glass plate, 2.4g/cm3	*/Plexiglas ploča/*
m1	0 estep=15	
	8016.02p 4.153623e-02 \$ Glass plate, 2.4g	/cm3
	11023.02p 6.063019e-03	
	14000.02p 1.731941e-02	
	20000.02p 3.866080e-03	
c	co-ordinate system transformation	
tr1	9.0 9.0 -5.305 100 010 001 1	*/translacija koordinatnog sistema/*
с ka	Source definition (Cs137 contam rakteristike izvora: položaj, rad	inated glass plate) /* Deo modela koji definiše ijus, vrstu emitovanog zračenja i energetsku

raspodelu i aktivnost izvora \*/

sdef par=2 erg=d1 cel=d2 x=d3 y=d4 z=d5 pos=d6 wgt=3.42387e+4

si1	L 0.6616	56		*/energija gama zraka Cs137 i verovatnoća emisije/*
sp1	D 0.852	1		
si2	L 22:20	23:20	24:20	
	25:20	26:20	27:20	*/zadata distribucija izvora/*
	28:20	29:20	30:20	
	31:20	32:20	33:20	

34:20 35:20 36:20				
37:20 38:20 39:20				
sp2 D 0.1635226 0.0545075 0.1090151				
0.1090151 0.1635226 0.0545075				
0.1090151 0.0545075 0.1635226				
0.0028297 0.0018864 0.0018864				
0.0028297 9.432178E-4 0.0018864				
0.0028297 0.0018864 0.0018864				
si3 H 0.0 5.9				
sp3 D 0.0 1.0				
si4 H 0.0 5.9 */pozicija izvora u xyz sistemu/*				
sp4 D 0.0 1.0				
si5 H 0.0 0.008				
sp5 D 0.0 1.0				
si6 L 0.1 0.1 0.001				
sp6 D 1.0				
imp:e 1 0 48r				
modep e\$ coupled photon & electron problem				
phys:p 1.0 0 0 \$ max E(p)=10 MeV, p produce e /*zadata fizika transporta fotona i elektrona /*				
phys:e 10.0 0 0 0 1 1 1 1 1 \$ max E(e)=10 MeV, e will produce p				
nps 5+8				
prdmp 5+8 2+6 5+8 1 1+5				
print				
fc18 tally for pulse height in cells 1				
f18:p,e 1\$ gamma pulse height in cells 1*/definisan zadatak modela/*				
ft18 GEB -1.343e-2 7.731e-2 -1.436e-1 */definisana rezolucija detektora/*				
e18 0.00000E+00 1.04793E-03 2.09586E-03 3.14379E-03 4.19172E-03				
7.46382E-03 1.07366E-02 1.40100E-02 1.72840E-02 2.05588E-02 */amplitudska raspodela				
2.38342E-02 2.71102E-02 3.03869E-02 3.36643E-02 3.69423E-02 po energijama/*				
4.02210E-02 4.35003E-02 4.67803E-02 5.00609E-02 5.33423E-02				

5.66242E-02 5.99069E-02 6.31901E-02 6.64741E-02 6.97587E-02 7.30439E-02 7.63299E-02 7.96164E-02 8.29037E-02 8.61916E-02 8.94801E-02 9.27693E-02 9.60592E-02 9.93497E-02 1.02641E-01 1.05933E-01 1.09225E-01 1.12518E-01 1.15812E-01 1.19107E-01 1.22402E-01 1.25698E-01 1.28994E-01 1.32291E-01 1.35589E-01 1.38887E-01 1.42186E-01 1.45486E-01 1.48787E-01 1.52088E-01 1.55389E-01 1.58692E-01 1.61995E-01 1.65299E-01 1.68603E-01 1.71908E-01 1.75214E-01 1.78520E-01 1.81827E-01 1.85134E-01 1.88443E-01 1.91752E-01 1.95061E-01 1.98372E-01 2.01683E-01 2.04994E-01 2.08306E-01 2.11619E-01 2.14933E-01 2.18247E-01 2.21562E-01 2.24878E-01 2.28194E-01 2.31511E-01 2.34828E-01 2.38146E-01 2.41465E-01 2.44785E-01 2.48105E-01 2.51426E-01 2.54747E-01 2.58069E-01 2.61392E-01 2.64715E-01 2.68039E-01 2.71364E-01 2.74690E-01 2.78016E-01 2.81342E-01 2.84670E-01 2.87998E-01 2.91327E-01 2.94656E-01 2.97986E-01 3.01317E-01 3.04648E-01 3.07980E-01 3.11313E-01 3.14646E-01 3.17980E-01 3.21315E-01 3.24650E-01 3.27986E-01 3.31322E-01 3.34660E-01 3.37998E-01 3.41336E-01 3.44675E-01 3.48015E-01 3.51356E-01 3.54697E-01 3.58039E-01 3.61382E-01 3.64725E-01 3.68069E-01 3.71413E-01 3.74758E-01 3.78104E-01 3.81451E-01 3.84798E-01 3.88145E-01 3.91494E-01 3.94843E-01 3.98193E-01 4.01543E-01 4.04894E-01 4.08246E-01 4.11599E-01 4.14952E-01 4.18305E-01 4.21660E-01 4.25015E-01 4.28370E-01 4.31727E-01 4.35084E-01 4.38441E-01 4.41800E-01 4.45159E-01 4.48518E-01 4.51879E-01 4.55240E-01 4.58601E-01 4.61964E-01 4.65326E-01 4.68690E-01 4.72054E-01 4.75419E-01 4.78785E-01 4.82151E-01 4.85518E-01 4.88886E-01 4.92254E-01 4.95623E-01 4.98992E-01 5.02362E-01 5.05733E-01 5.09105E-01 5.12477E-01 5.15850E-01 5.19223E-01 5.22597E-01 5.25972E-01 5.29347E-01 5.32723E-01 5.36100E-01 5.39478E-01 5.42856E-01 5.46234E-01 5.49614E-01 5.52994E-01 5.56375E-01 5.59756E-01 5.63138E-01 5.66521E-01 5.69904E-01 5.73288E-01 5.76673E-01 5.80058E-01 5.83444E-01 5.86831E-01 5.90218E-01 5.93606E-01 5.96995E-01 6.00384E-01 6.03774E-01 6.07164E-01 6.10556E-01 6.13947E-01 6.17340E-01 6.20733E-01 6.24127E-01 6.27522E-01 6.30917E-01 6.34313E-01 6.37709E-01 6.41106E-01 6.44504E-01 6.47903E-01 6.51302E-01 6.54702E-01 6.58102E-01 6.61503E-01 6.64905E-01 6.68307E-01 6.71710E-01 6.75114E-01 6.78519E-01 6.81924E-01 6.85329E-01 6.88736E-01 6.92143E-01 6.95551E-01 6.98959E-01 7.02368E-01 7.05778E-01 7.09188E-01 7.12599E-01 7.16011E-01 7.19423E-01 7.22836E-01 7.26249E-01 7.29664E-01 7.33079E-01 7.36494E-01 7.39911E-01 7.43327E-01 7.46745E-01 7.50163E-01 7.53582E-01 7.57002E-01 7.60422E-01 7.63843E-01 7.67264E-01 7.70687E-01 7.74109E-01 7.77533E-01 7.80957E-01 7.84382E-01 7.87807E-01 7.91234E-01 7.94660E-01 7.98088E-01 8.01516E-01 8.04945E-01 8.08374E-01 8.11804E-01 8.15235E-01 8.18666E-01 8.22098E-01 8.25531E-01 8.28964E-01 8.32398E-01 8.35833E-01 8.39268E-01 8.42704E-01 8.46141E-01 8.49578E-01 8.53016E-01 8.56455E-01 8.59894E-01 8.63334E-01 8.66775E-01 8.70216E-01 8.73658E-01 8.77101E-01 8.80544E-01 8.83988E-01 8.87432E-01 8.90878E-01 8.94323E-01 8.97770E-01 9.01217E-01 9.04665E-01 9.08114E-01 9.11563E-01 9.15013E-01 9.18463E-01 9.21914E-01 9.25366E-01 9.28819E-01 9.32272E-01 9.35725E-01 9.39180E-01 9.42635E-01 9.46091E-01 9.49547E-01 9.53004E-01 9.56462E-01 9.59920E-01 9.63379E-01 9.66839E-01 9.70299E-01 9.73760E-01 9.77222E-01 9.80685E-01 9.84147E-01 9.87611E-01 9.91076E-01 9.94540E-01 9.98006E-01 1.00147E+00 1.00494E+00 1.00841E+00 1.01188E+00 1.01534E+00 1.01881E+00 1.02228E+00 1.02575E+00 1.02923E+00 1.03270E+00 1.03617E+00 1.03964E+00 1.04312E+00 1.04659E+00 1.05007E+00 1.05355E+00 1.05702E+00 1.06050E+00 1.06398E+00 1.06746E+00 1.07094E+00 1.07442E+00 1.07790E+00 1.08138E+00 1.08486E+00 1.08834E+00 1.09183E+00 1.09531E+00 1.09880E+00 1.10228E+00 1.10577E+00 1.10925E+00 1.11274E+00 1.11623E+00 1.11972E+00 1.12321E+00 1.12670E+00 1.13019E+00 1.13368E+00 1.13717E+00 1.14066E+00 1.14416E+00 1.14765E+00 1.15115E+00 1.15464E+00 1.15814E+00 1.16163E+00 1.16513E+00 1.16863E+00 1.17213E+00 1.17563E+00 1.17913E+00 1.18263E+00 1.18613E+00 1.18963E+00 1.19313E+00 1.19664E+00 1.20014E+00 1.20364E+00 1.20715E+00 1.21065E+00 1.21416E+00 1.21767E+00 1.22118E+00 1.22468E+00 1.22819E+00 1.23170E+00 1.23521E+00 1.23872E+00 1.24224E+00 1.24575E+00 1.24926E+00 1.25277E+00 1.25629E+00 1.25980E+00 1.26332E+00 1.26684E+00 1.27035E+00 1.27387E+00 1.27739E+00 1.28091E+00 1.28443E+00 1.28795E+00 1.29147E+00 1.29499E+00 1.29851E+00 1.30204E+00 1.30556E+00 1.30908E+00 1.31261E+00 1.31613E+00 1.31966E+00 1.32319E+00 1.32671E+00 1.33024E+00 1.33377E+00 1.33730E+00 1.34083E+00 1.34436E+00 1.34789E+00 1.35143E+00 1.35496E+00 1.35849E+00 1.36203E+00 1.36556E+00 1.36910E+00 1.37263E+00 1.37617E+00 1.37971E+00 1.38324E+00 1.38678E+00 1.39032E+00 1.39386E+00 1.39740E+00 1.40094E+00 1.40449E+00 1.40803E+00 1.41157E+00 1.41512E+00 1.41866E+00 1.42221E+00 1.42575E+00 1.42930E+00 1.43285E+00 1.43639E+00 1.43994E+00 1.44349E+00 1.44704E+00 1.45059E+00 1.45414E+00 1.45770E+00 1.46125E+00 1.46480E+00 1.46835E+00 1.47191E+00 1.47546E+00 1.47902E+00 1.48258E+00 1.48613E+00 1.48969E+00 1.49325E+00 1.49681E+00 1.50037E+00 1.50393E+00 1.50749E+00 1.51105E+00 1.51461E+00 1.51818E+00 1.52174E+00 1.52531E+00 1.52887E+00 1.53244E+00 1.53600E+00 1.53957E+00 1.54314E+00 1.54671E+00 1.55027E+00 1.55384E+00 1.55741E+00 1.56099E+00 1.56456E+00 1.56813E+00 1.57170E+00 1.57528E+00 1.57885E+00 1.58242E+00 1.58600E+00 1.58958E+00 1.59315E+00 1.59673E+00 1.60031E+00 1.60389E+00 1.60747E+00 1.61105E+00 1.61463E+00 1.61821E+00 1.62179E+00 1.62538E+00 1.62896E+00 1.63254E+00 1.63613E+00 1.63971E+00 1.64330E+00 1.64689E+00 1.65047E+00 1.65406E+00 1.65765E+00 1.66124E+00 1.66483E+00 1.66842E+00 1.67201E+00 1.67560E+00 1.67920E+00 1.68279E+00 1.68638E+00 1.68998E+00 1.69357E+00 1.69717E+00 1.70077E+00 1.70436E+00 1.70796E+00 1.71156E+00 1.71516E+00 1.71876E+00 1.72236E+00 1.72596E+00 1.72956E+00 1.73317E+00 1.73677E+00 1.74037E+00 1.74398E+00 1.74758E+00

#### tf18 17r

c end data section

### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Abelquist E.W., Brown W.S., Powers G.E., Huffert A.M., (1998). Minimum Detectable Concentrations with Typical Radiation Survey Instruments for Various Contaminants and Field Conditions, NUREG 1507, U.S: Nuclear Regulatory Commission, Washington, June.
- [2] Acar R., Acar O., (2004). Determination of <sup>90</sup>Sr Accumulation in Human Teeth, Turkish Journal of Chemistry 28, 67-74.
- [3] Alvarez A., Navarro N., (1996). Method for Actinides and Sr-90 Determination in Urine Samples. Applied Radiation and Isotopes 47, 869-873.
- [4] ATSDR, (2004). U.S. Department of health and human services, Toxicological profile for Sr, April 2004: <u>http://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp159-p.pdf</u>
- [5] Becker J.S., (2005). Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) and laser ablation ICP-MS for isotope analysis of long-lived radionuclides. International Journal of Mass Spectrometry 242, 183-195.
- [6] Berg D., et al., (1991). Radioaktivitätsmessung in der Russischen Republic. In: 11.
   Arbeitstagung für Mengen- und Spurenelemente 12./13. Dezember 1991. Anke, M., ed., Jena, Friedrich Schiller Universität Jena, 317-326.
- [7] Bielajew A. F. (2001). Fundamentals of the Monte Carlo method for neutral and charged particle transport, Department of Nuclear Engineering and Radiological Sciences, University of Michigan.
- [8] Bikit I., Slivka J., Čonkić Lj., Krmar M., Vesković M., Žikić-Todorović N., Varga E, Ćurčić S., Mrdja D., (2005). Radioactivity of the soil in Vojvodina (northern province of Serbia and Montenegro). J Environ Radioactivity; 78: 11-9.
- [9] Bikit Ištvan, Mrđa Dušan, Grujić Selena, Kozmidis-Luburić Uranija (2011), *Granulation Effects On The Radon Emanation Rate*, Radiation Protection Dosimetry, vol. 145, br. 2-3, str. 184-188.
- [10] Birke M., Reimann C., Demetriades A., Rauch U., Lorenz H., Harazim B. and Glatte W., Special Issue, *J. Geochem. Explor.* 107 (3) (2010) 217-226.
- [11] Bracken G., B.Colby, Radiological field characterization of low level waste by measuring surface contamination and calculating total and specific activity, WM'99 Conference, February 28 - March 4, Tuscon, Arizona, 1999.
- Brodsky A., and R.G. Gallaghar (1991). Statistical Considerations in Practical Contamination Monitoring, Radiation Protection Management 8(4):64-78. July/August.

- [13] Brodsky A. (1992). Exact Calculation of Probabilities of False Positives and False Negatives for Low Background Counting, Health Physics 63(2):198-204. August.
- [14] Brodsky A. (1993). Standardizing Minimum Detectable Amount Formulations, Health Physics 64(4):434-435. April.
- [15] Browne E., J.K. Tuli (2007). Nuclear data sheets for 137Cs, Nuclear Data Sheets 108 2173–2318.
- [16] Burgess P. H., Handbook of measurement methodes and strategies at very low levels and activities, European Commission Nuclear Safety and the Environment, Chilton, 1998.
- [17] Canberra, (2000). A Packard BioScience Company, Edition Twelve, Product Catalog.
- [18] Canberra (2010). Passivated Implanted Planar Silicon (PIPS) Detectors, Canberra Industries, Inc.
- [19] Chien C. L., (1996). Radiochemistry in Nuclear Power Reactors, Radiochemical Techniques, National Academy Press, Washington, DC.
- [20] Choi Y. H., Kana H.-S., Jun I., Keum D.-K., Park H.-K., Choi G.-S., Lee H., Lee C.-W., (2007). Transfer of Sr to rice plants after its acute deposition onto flooded paddy soils. Journal of Environmental Radioactivity 93, 157-169.
- [21] Currie L. A., Analytical Chemistry, 40 (1968) 586-593.
- [22] DOE (1998). U.S. Department of Energy, BetaScintTM Fiber-Optic Sensor for Detecting Strontium- 90 and Uranium-238 in Soil, Laboratory for Energy-Related Health Research Davis, California, December 1998.
- [23] Dierkes L., Schlochtermeyer, B., Stadlbauer, E.A., (1995). Determination methods of Fe-55, Ni-63 and Ca-41 in materials and wastes during decommissioning, Decommissioning of Nuclear Installations (Proc. EC Conf. Luxembourg, 1994), European Commission, Luxembourg 261.
- [24] Doyle E.J., (2008). Nuclear Safeguards, Securitu and Nonproliferation, Elsevier Inc.
- [25] EC, (1995). European Commission, Handbook on Decommissioning of Nuclear Installations, Rep. EUR 16211, European Commission, Luxembourg.
- [26] Eckerman K.F., J.C. Westfall Ryman, M. Cristy, (1994). Health Physics 67 (4) 338.
- [27] English, R.A., Burdette, R.L., Kessler, W.E., (1994). The new radiological criteria for decommissioning: Importance of transuranic nuclides, Decommissioning, Decontamination and Environmental Restoration at Contaminated Nuclear Sites (DDER-194) (Proc. Top. Symp. Washington, DC, 1994), American Nuclear Society, Lagrange Park, IL.

- [28] EPA, 1979. Radiochemical Analytical Procedures for Analysis of Environmental Samples, EMSL.IV.0539.17, Environmental Monitoring and Support Laboratory (US Environmental Protection Agency).
- [29] EPRI, (1985). Electric Power Research Institute, Radionuclide Correlations in Low-Level Radwaste, Rep. EPRI-NP-4037, Electric Power Research Institute, Palo Alto, CA (June).
- [30] Espartero A.G., G.Piña, J.A.Suárez, (1999). Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 442, 790–794.
- [31] Fayez H.H., Al-Ghorabie, (2006). Development of a computer code using the EGS4 Monte Carlo simulation system to evaluate the response of a NaI(Tl) detector to photons with energies below 300 keV, Applied Radiation and Isotopes 64 85–92.
- [32] Fermi E., Z. (1934). f.Physik 88 (161).
- [33] Feuerstein Juliet, (2007). Determination of <sup>90</sup>Sr in soil samples using inductively coupled plasma mass spectrometry equipped with dynamic reaction cell, University of Natural Resources and Applied Life Sciences, Vienna.
- [34] Fiskum S.K., (2000). Preconcentration and analysis of strontium-90 and technetium-99 from hanford groundwater using solid phase extraction. J Radioanal Nucl Chem 245:261–272.
- [35] Froidevaux P, Geering J-J, Valley J-F (2002). Strontium-90 determination in biological and environmental samples by direct milking of its daughter product, yttrium-90. J Radioanal Nucl Chem 254:23–27.
- [36] Fuks L., H. Polkowska-Motrenko, (2006). Nucleonika 51 (Suppl. 2) 27.
- [37] Gastberger M., Steinhäusler F., Gerzabek M.H., Hubmer A., (2001). Fallout Sr and cesium transfer from vegetation to cow milk at two lowland and two Alpine pastures. Journal of Environmental Radioactivity 54, 267-273.
- [38] Giles J. R., Roybal L. G., Carpenter M. V., Oertel C. P., Jacobson J. J., Eaton D. L., Schwendiman G. L., (2006). Real-Time Remediation Utilizing the Backpack Sodium Iodide System and the U.S. EPA Triad Approach, WM'06 Conference, February 26-March 2, Tucson, AZ.
- [39] Gómez, E., Garcias, F., Casas, M., CerdaÁ, V., (1997). Determination of <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in calcareous soils: geographical distribution on the island of Majorca. Appl. Radiat. Isot. 48, 699±704.
- [40] Goutelard F., Nazard R., Bocquet C, Coquenlorge N., Letessier P., Calmet D., (2000). Improvement in <sup>90</sup>Sr measurements at very low levels in environmental samples. Applied Radiation and Isotopes 53,145-151.

- [41] Grueter, H., (1971). Radioactive fission product 137Cs in mushrooms in W. Germany during 1963-1970. Health Phys. 20, 655-656.
- [42] Grujić Selena, Miodrag Milošević, Uranija Kozmidis-Luburić, Ištvan Bikit, (2011a). Monte Carlo Simulation Of Beta Radiation Response Functionfor Passivated Implanted Planar Silicon Detector, 55. Konferencija ETRAN-a, Banja Vrućica (Teslić), 6 - 9. Juna.
- [43] Grujić Selena, Milosević Miodrag, Kozmidis-Luburić Uranija, Bikit Istvan, (2011b). Monte Carlo simulation of beta radiation response function for semiconductor Si detector, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A (654) 288–292.
- [44] Grujić Selena, Ivana Đorđević, Miodrag Milošević, Uranija Kozmidis-Luburić, Monte Carlo simulation of GM probe and NaI detector efficiency for surface activity measurements, submitted to Radiation Measurements.
- [45] Gutwein, E.E., Kowal, G.M.,Sample (1981). Radiation data collection programme for decommissioning a PWR nuclear power plant, paper presented at Health Physics Siciety 26th Annual Mtg, 1981, Louisville, KY (abstract published in Health Phys. 41 6 (870).
- [46] Harvey B.R, Ibbett R.D., Lovett M.B., Williams K.J. (1989). Analytical procedures for the determination of strontium radionuclides in environmental materials, Ministry of Agriculture, Fisheries and Food Derectorate of Fisheries Research, Aquatitic Environment Protection: Lowestoft. p. 33.
- [47] HASL, (1977). H.A.S.L. Procedures Manual, Harley.
- [48] Heilgeist M. (2000). Use of extraction chromatography, ion chromatography and liquid scintillation spectrometry for rapid determination of strontium-89 and strontium-90 in food in cases of increased release of radionuclides. J Radioanal Nucl Chem 245:249–254.
- [49] Heriot T. H. P (2008). Strontium saccharate process, Manufacture of Sugar from the Cane and Beet. ISBN 9781443725040.
- [50] Herranz M., Elejalde C, Legarda F., Romero F., (2001). <sup>90</sup>Sr content of soils from Biscay (Spain). Applied Radiation and Isotopes 55, 521-525.
- [51] Hochel R. C., (2000). Characterization of Mixed Beta/Gamma Surface Contamination Using Passive Radiation Measurements, Report WSRC-MS-2000-00331, Westinghouse Savannah River Company.
- [52] Hu-Xia Shi, Bo-Xian Chen, Ti-Zhu Li, Di Yun, (2002). Precise Monte Carlo simulation of gamma-ray response functions for an NaI(Tl) detector, Applied Radiation and Isotopes 57 517–524.

- [53] IAEA, (1994). TRS No. 373, Decommissioning Techniques for Research Reactors, Vienna.
- [54] IAEA/ANL, (1998). Interregional Training Course on Decontamination and Decommissioning of Research Reactors and Other Small Nuclear Facilities, Lecture 2.4, March 9-27.
- [55] IAEA, (1998). Radiological Characterisation of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes, Technical Reports series No. 389, Vienna.
- [56] IAEA, (2009a). Determination And Use Of Scaling Factors For Waste Characterization In Nuclear Power Plants, IAEA NUCLEAR ENERGY SERIES No. NW-T-1.18, Vienna.
- [57] IAEA, (2009b). Nuclear Energy Series No. NW-T-1.18, Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plants, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna.
- [58] IAEA, (2010). Research Reactors: Purpose and Future, Division of Physical and Chemical Sciences Department of Nuclear Sciences and Applications, November 2010.
- [59] IAEA TC, (2003). Project "Decommissioning of the Ra Research Reactor in Vinča Institute", Initial Planning for the Decommissioning of the Ra Research Reactor (YUG4028- 92441A), Chapter 2, Facility Description, Vinča Institute, Belgrade.
- [60] ICRP 23, (1975). Report of the task group on reference man. International Commission on Radiological Protection, Oxford, Pergamon Press.
- [61] Ilić, D. Radovan (1991). Tehnike Monte Karlo u transportu čestica, Naučna knjiga, Beograd.
- [62] ISO 7503-1, (1988). International Standard, Evaluation of Surface Contamination: Beta-emitters (maximum beta energy greater than 0.15 MeV) and alfa emitters, ISO 7503-1:1988 E.
- [63] Jammet H., Dousset M. (1982). Nuclear toxicant: origin, presence or release in the environment, contribution to human exposure, In: Radionuclide metabolism and toxicity. Galle, P., Masse, R., eds., Paris, New York, Masson, I-32.
- [64] KAERI, (2000). Korea Atomic Energy Research Institute [online]. Last visited 25.04.2012. <u>http://atom.kaeri.re.kr/index.html</u>
- [65] Kimura T., Iwashima. K., Ishimori. T., Hamada. T., (1979). Separation of strontium-89 and -90 from calcium in milk with a macrocyclic ether. Anal. Chem. 51, 1113±1116.
- [66] Knoll G.F. (2000), *Radiation Detection and measurement*, Third Edition, John Wiley & Sons, Inc. N.Y.

- [67] Konshin O. V., (1992a). Mathematical model of 137Cs migration in soil: analysis of observations following the Chernobyl accident. Health Phys. 63, 301-306.
- [68] Konshin. O. V., (1992b). Transfer of 137Cs from soil to grass-analysis of possible sources of uncertainty. Helth Phys. 63, 307-315.
- [69] Kumar S.S., Sivaiah M.V., Venkatesan K.A., Krishna R.M., Murthy G., Sasidhar P. (2003). Removal of cesium and strontium from acid solution using a composite of zirconium molybdate and zirconium tungstate. J Radioanal Nucl Chem 258:321–327.
- [70] La Rosa J.J., (2001). Separation of actinides, cesium and strontium from marine samples using extraction chromatography and sorbents. J Radioanal Nucl Chem 248:765–770.
- [71] LabSOCS Calibration Software (2002). Users Manual, Model S574, V4.1, Canberra Industries, Inc., 2002. (US Patent 6228664 B1, Compliant with 2009 NRC Regulatory Guide 1.21).
- [72] Lariviere D., Taylor V.F., Evans R.D., Comett R.J., (2006). Radionuclide determination in environmental samples by inductively coupled plasma mass spectrometry. Spectrochimica, Acta Part B 61, 877-904.
- [73] Lawson C.R., R.J. Hanson, (1974). Solving Least-Squares Problem, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, N. J.
- [74] Lazarea L., C. Cresteya, C. Bleisteinb, (2009). Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 279 (2) 633.
- [75] Lee C.W., (2000). Separation and preconcentration of strontium from calcium in aqueous samples by supported liquid membrane containing crown ether. J Radioanal Nucl Chem 243:767–773.
- [76] Lederer, C.M., Hollander, J.M., Perlman, I.,(1967). Table of isotopes. 6th ed. New York, John Wiley & Sons.
- [77] Leo W.R.(1994). Tehniques for Nuclear and Particle Physics Experiments. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York.
- [78] MARSSIM, Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual, Revision 1, 2000.
- [79] Mateosa J.J., E. Gómez, F. Garcias, M. Casas, V. Cerdà, (2000). Rapid 90Sr/90Y determination in water samples using a sequential injection method, Applied Radiation and Isotopes 53 139±144.
- [80] McMillan J.W., (1995). The characterisation and determination of radioactive waste from decommissioning, Decommissioning of Nuclear Installations (Proc. EC Conf. Luxembourg, 1994) European Commission, Luxembourg 271.

- [81] Mietelski J.W., (2001). Sr and stable strontium in bones of wild, herbivorous animals from Poland. J Radioanal Nucl Chem 247:363–370.
- [82] Milošević et.al.(1981), Godišnji izveštaji o radu reaktora RA u periodu 1979 1981. godina. Interna dokumentacija reaktora RA, Institut Vinča, decembar 1979-1981 (NTI-149).
- [83] Milošević M., Ljubenov V., (2003). Initial planning for the decommissioning of the RA research reactor (YUG4028-92441A) Activity No. 6: Start of the characterization process for the RA reactor building, Vinča Institute, Belgrade.
- [84] Milošević M., (2005). Determination of gamma ray and neutron dose rate on the outer surface of existing containers with Irradiated fuel in the ra reactor spent fuel storage, (Revision 1, June 2007), Vinča Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, October.
- [85] Milošević M., (2006). Summary of the RA Reactor Fuel Burn up Analysis, Centre NTI Internal memo, Institut Vinča, November.
- [86] Milošević M., (2011). "Description and Validation of Methods Used for Safety Assessment of the RA Reactor Spent Fuel Elements Transporting, " 55th ETRAN Conference, Banja Vrućica (Teslić, RS, BiH), June 6 – 9.
- [87] M. Milošević, J. Raičević, (2012). Progress In Decommissioning In Serbia, Workshop on the Preparation for Decommissioning under the Research Reactor Decommissioning Demonstration, 7 to 11 May 2012, Sydney – Australia.
- [88] Moreno Teresa, Querol Xavier, Alastuey Andrés, CruzMinguillón Mari, Pey Jorge, Rodriguez Sergio, Vicente Miró, José Felis Carles, et al. (2007). Recreational atmospheric pollution episodes: Inhalable metalliferous particles from firework displays, Atmospheric Environment 41 (5): 913. doi:10.1016/j.atmosenv.2006.09.019.
- [89] Murray, W. H. (1977). The Companion Guide to the West Highlands of Scotland. London: Collins. ISBN 0002111357.
- [90] Nelms S., (2005). Inductively coupled plasma mass spectrometry handbook, Oxford (UK), Blackwell Publishing.
- [91] N.N., (2007). Liquid scintillation counting, in Wikipedia, http://en.wikipedia.org/wiki/Liquid\_scintillation\_counting
- [92] NNDC, (2012). Decay data from National Nuclear Data Center at the Brookhaven National Laboratory in the US, <u>http://www.nndc.bnl.gov/chart/</u>
- [93] NTI, (2007). Izveštaj o sigurnosti za prepakivanje i privremeni smeštaj ozračenog nuklearnog goriva reaktora Ra, Vinča NTI 149.
- [94] NTI, (2008). Safety Analysis Report on Repackaging and Temporary Storing of the RA Reactor Spent Nuclear Fuel, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Report Vinča-NTI-159E, Vinča, May.

- [95] Pantelić G., Tanasković I., Javorina LJ., Vitorović G., Vuletić V., (2004). Aktivnost 137Cs u uzorcima iz životne sredine regiona Užica. Veterinarski glasnik; 58: 233-39.
- [96] Paul M., Berkovits D., Cecil L.D., Feldstein H., Hershkowitz A., Kashiv Y., Vogt S., (1997). Environmental <sup>90</sup>Sr measurements. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 123, 394-399.
- [97] Paulenova A. (2001). Combined extraction chromatography and scintillation detection for off-line and on-line monitoring of strontium in aqueous solutions. J Radioanal Nucl Chem 249:295–301.
- [98] Pešić M., K. Subotić, O. Šotić, I. Plećaš, V. Ljubenov, A. Perić, (2002). Vinča Nuclear Decommissioning Program, Proceedings of the XLVI ETRAN Conference, Banja Vrućica, Teslić, BiH, June 4-7, 2002, Vol. IV, pp. 21-30.
- [99] Peterson John, Margaret MacDonell, Lynne Haroun, and Fred Monette, (2007). Radiological and Chemical Fact Sheets to Support Health Risk Analyses for Contaminated Areas, Argonne National Laboratory Environmental Science Division, March.
- [100] Pietrzak-Flis Z, Rosiak L, Suplinska MM, Chrzanowski E, Dembinska S., (2001). Daily intakes of <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>230</sup>Th, <sup>228</sup>Th and <sup>226</sup>Ra in the adult population of central Poland. Sci Total Environ; 273: 163-9.
- [101] Rao S.V.S., (2000). Effective removal of cesium and strontium from radioactive wastes using chemical treatment followed by ultra filtration. J Radioanal Nucl Chem 246:413–418.
- [102] Ravindra Khaiwal, Mor Suman, Kaushik C. P., (2003). Short-term variation in air quality associated with firework events: A case study, Journal of Environmental Monitoring 5 (2): 260–4. doi:10.1039/B211943A. PMID 12729265.
- [103] Selwyn R.G., Nickles R.J., Thomadsen B.R., DeWerd L.A., Micka J.A., (2007). Applied Radiation and Isotopes 65, 318–327.
- [104] Shabana E.I., El-Dessouky M.I., (2002). Sorption of cesium and strontium ions on hydrous titanium dioxide from chloride medium. J Radioanal Nucl Chem 253:281–284.
- [105] Shiraishi K., Ko S., Arae H., Ayama K., (2006). Rapid analysis technique for Sr, thorium, and uranium in urine samples. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 273, 307-310.
- [106] SCK/CEN, (1993). Studiecentrum Voor Kernenergie/Centre D'etude De L'energie Nucleaire, Investigation in the Determination of Disposal Critical Nuclides in Waste from PWR Power Plants, Rep. R-3016, Annual Report.
- [107] Slivka, J., Bikit, I., Vesković, M., Čonkić, Lj. (1994). Gama spektrometrija, specijalne metode i primene. Univerzitet u Novom Sadu, Novi Sad.

- [108] Steinmeyer Paul R. (2005). G-M Pancake Detectors: Everything You've Wanted to Know (But Were Afraid to Ask) Health Physicist, RSO Magazine, Volume 10, No. 5.
- [109] Steinhauser Georg, Sterba Johannes H., Foster Michaela, Grass Friedrich, Bichler Max, (2008). Heavy metals from pyrotechnics in New Years Eve snow. Atmospheric Environment 42 (37): 8616. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.08.023.
- [110] Steinhauser G., Musilek A., (2009). Do pyrotechnics contain radium?, Environmental Research Letters 4 (3): 034006. doi:10.1088/1748-9326/4/3/034006.
- [111] Steljić M., Milošević M., Beličev P., (2008). Modeling of Germanium Detector and its Sourceless Calibration, Nuclear Technology and Radiation Protection, Vol. XXIII, No. 2, pp.51-57, December.
- [112] Suomela J., Wallberg L., Melin J., SSI-rapport (1993). no: 93-11. ISSN: 0280-4434.
- [113] Šotić O. et al., (1984). Godišnji izveštaji o radu reaktora RA u periodu 1982. 1984. godina. Interna dokumentacija reaktora RA, Institut Vinča, decembar 1982-1984 (NTI-149).
- [114] Tarancón A., E. Alonso, J.F. Garcýa, G. Rauret, (2002). Analytica Chimica Acta 471 (135).
- [115] Tavakoli-Anbaran H., Izadi-Najafabadi, Miri-Hakimabad H., (2009). The Effect of Detector Dimensions on the NaI(Tl) Detector Response Function, Journal of Applied Sciences 9 (11): 2168-2173.
- [116] Thomas R., (2001). A beginners guide to ICP-MS Part II: The sample-introduction system. Spectroscopy 16(5), 56-60.
- [117] Torres J.M., J. Tent, M. Ilaurado', G. Rauret, (2002). Journal of Environmental Radioactivity (59) 113.
- [118] TS, (1997). EBERLINE E-600, Interface Program V4.03, Thermo Scientific.
- [119] TS, (2003). HP-210T and SHP-360 60 Beta/Gamma Hand Probes, Technical Manual, Thermo Scientific(a).
- [120] TS, (2003b). E-600 Portabe Radiation Monitor, Technical Manual, Thermo Scientific (δ).
- [121] Tykot R.H., (2004). Scientific methods and applications to archaeological provenance studies. Proceedings of the International School of Physics "Enrico Fermi" Course CLIV.407-432.
- [122] Tykva Richard, Dieter Berg et al. (2004). Man-Made and Natural Radioactivity in Environmental Pollution and Radiochronology, Edited by Richard Tykva and Dieter Berg, Kluwer Academic Publishers.

- [123] UNSCEAR, (1977). Sources and effects of ionization radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York, UN, Report to the General Assemblay, with annexes.
- [124] UNSCEAR, (1982). Ioniztion Radiation: Sources and biological effects. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York, UN, Report to the General Assembly, with annexes.
- [125] UNSCEAR, (2000a). Report, Annex C, Exposures to the public from man-made sources of radiation: <u>http://www.unscear.org/docs/reports/annexc.pdf</u>
- [126] UNSCEAR, (2000b). Report, Annex J, Exposures and effects of the Chernobyl accident:<u>http://www.unscear.org/docs/reports/annexj.pdf</u>
- [127] US NRC, (1985). United States Nuclear Regulatory Commission, Assay of Long Lived Radionuclides in Low-Level Wastes from Power Reactors, Rep. NUREG/CR-4101, NRC, Washington, DC (Apr.).
- [128] US NRC, (1991). United States Nuclear Regulatory Commission, Radionuclide Characterization of Reactor Decommissioning Waste and Spent Fuel Assembly Hardware, NUREG/CR-5343, Washington, DC.
- [129] Vancaronura P., Makrlík E., Vobecký V., (2003). Separation of yttrium from strontium in the aqueous phase of the water/nitrobenzene extraction system. J Radioanal Nucl Chem 256:171–172
- [130] Wendt K., Trautmann N., Bushaw B.A., (2000). Resonant laser ionization mass spectrometry: An alternative to AMS? Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 172, 162-169.
- [131] Wiechen, A., (1972). Ursachen des hohen Cs-137- Gehaltes der Milch von Moorböden. Milchwissenschaft 27, 82-84.
- [132] Yamaguchi N., Seki K., Komamura M., Kurishima K., (2007). Long-term mobility of fallout <sup>90</sup>Sr in ploughed soil, and <sup>90</sup>Sr uptake by wheat grain. Science of the Total Environment 372, 595-604.

## УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ КЉУЧНА ДОКУМЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА

Редни број: РДБ	
Идентификациони број: ИДБ	
Тип документације: ТД	Монографска дисертација
Тип записа:: ТЗ	Текстуални штампани материјал
Врста рада: ВР	Докторска дисертација
Ime i prezime autora: AV	мр Селена Грујић
Ментор: МН	проф. др Иштван Бикит
Наслов рада: НР	Брзе недеструктивне методе детекције фисионих продуката при декомисији нуклеарних реактора
Језик публикације: ЈП	Српски, ћирилица
Језик извода: ЈИ	Српски
Земља публиковања: 3П	Србија
Уже географско подручје: УГП	Војводина
Година: ГО	2012.
Издавач: ИЗ	ауторски репринт
Место и адреса: МА	ПМФ, Трг Доситеја Обрадовића 4, Нови Сад

Физички опис рада:	(6 поглавља/ 173 странице / 53 слике / 24
ФО	графикона / 36 табела /132 референци / 6
	прилога)
Научна област: НО	Физика
Научна дисциплина: НД	Нуклеарна физика

Кључне речи: РО		
УДК		
Чува се: ЧУ	Библиотека Сад, Трг Доо	Департмана за Физику, Нови ситеја Обрадовића 4
Важна напомена: ВН		
Извод: ИЗ	У оквиру ов метода за де радионуклии 0.15 keV) у узорку позна полупроводи методе тести специфичне базена у ком гориво реакт препакивано приказана м површинске у случају ко радионуклии емитери. Ме геометријски детектора и КОРИ-5 код	ог рада развијена је и тестирана текцију тешко-мерљивих да бета емитера ( $E_{max} >$ ваздуху, чврстом и течном ате геометрије коришћењем ничког Si детектора. Примена прана је на примеру одређивања активности <sup>137</sup> Cs and <sup>90</sup> Sr у води не је лежало ислужено нуклеарно гора PA и у просторији у којој је о ислужено гориво. Такође је етода за одређивање укупне активности (везане и невезане) нтаминације површина дима који су бета и гама годе се базирају на им моделима Гајгер Милеровог сцинтилационог NaI детектора и Monte Carlo симулација и да.
Датум прихватања теме од стране НН већа: ДП	10.11.2011.	
Датум одбране: DO		
Чланови комисије: КО	председник: члан:	др Душан Мрђа, ванредни професор, ПМФ, Нови Сад др Мирослав Весковић, редовни професор ПМФ, Нови Сад
	члан:	др Уранија Козмидис-Лубурић, редовни професор ФТН, Нови Сад
	члан:	др Борис Лончар, ванредни професор, Технолошко металуршки факултет, Београд

## University of Novi Sad Faculty of sciences Key word documentation

Accession number:		
ANO		
Identification number:		
INO		
Document type:		
Document type.	Monograph documentation	
Type of record:	Textual printed material	
TR		
Contents code:	DLD discontation	
CC	PhD dissertation	
Author:		
AU	mr Selena Grujić	
Montor		
	dr Istvan Bikit, full professor	
MIN		
Title:	Rapid non-destructive methods for detection of	
TI	fission products in the decommissioning of	
	nuclear reactors	
Language of text:		
LT	Serbian/Cyrillic	
Language of abstract.		
Language of abstract. Ι Δ	Serbian	
Country of publication:	Serbia	
CP		
Locality of publication:	Voivodina	
LP	Vorvodina	
Publication year:		
PY	2012.	
Publisher:		
DI	Author reprint	
Publication place:	PMF, Trg Dositeja Obradovića 3,	
PP PP	Novi Sad	

Physical description: PD	6 chapters, 173 pages, 36 tables, 53 pictures, 24 graphicons/ 6 appendices
Scientific field SF	Physics
Scientific discipline SD	Nuclear physics
Subject, Key words SKW UC Holding data:	beta particles spectrometry; Si PIPS detector modeling; sourceless response function determination; MCNP-5 Monte Carlo code, beta/gamma surface contamination, GM and NaI detectors modeling
--	--
HD	
Note: N	
Abstract: AB	This thesis describes the modeling of the Passivated Implanted Planar Silicon (PIPS) detector for the beta particles response function simulations with the MCNP-5 code. The verified model of a PIPS detector was applied in a non-destructive method that determines the activity of beta emitters in the sample with a known geometry and atomic number densities. The application of the proposed method for the determination of <sup>137</sup> Cs and <sup>90</sup> Sr activity in water samples taken from the RA reactor spent fuel storage pools and from the paper filter taken from an air monitor operated during repackaging of spent fuel elements, was presented. This thesis deals with the direct measurement of total (fixed plus removable) surface activity in the presence of interfering radiation fields. Two methods based on the Monte Carlo simulation are used: one for the Geiger-Muller (GM) ionisation probe and the other for sodium iodide (NaI) detector with lead collimators. Methods are briefly described, using the equations for the most general case and the geometry models for Monte Carlo simulation of both (GM and NaI) detectors
Accepted on Scientific Board on: AS	10 <sup>th</sup> November, 2011.
Defended: DE	
Thesis Defend Board: DB	president: dr Dušan Mrđa, associate professor, member: dr Miroslav Vesković, full professor, member: dr Uranija Kozmidis-Luburić, full professor member: dr Boris Lončar, associate professor