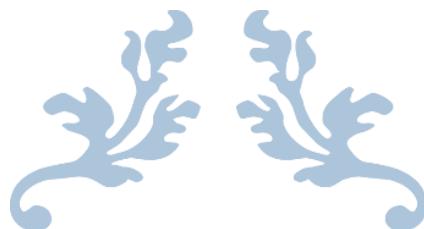




UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI
FAKULTET
DEPARTMAN ZA FIZIKU



Kalibracija tečnog scintilacionog detektora za merenje ^{222}Rn u vodi

- *master rad* -



Mentor:
Doc. dr Jovana Nikolov

Student:
Srđan Vuković

Novi Sad, 2017

Zahvaljujem se profesorici dr Jovani Nikolov na mentorstvu i neiscrponoj podršci tokom izrade ovog master rada. Takođe joj se zahvaljujem za sve korekcije, dopune i pozitivne kritike u vezi rada.

Zahvaljujem se profesoru dr Milanu Pantiću na podršci, poverenju i korisnim savetima tokom mojih studija.

Zahvaljujem se svim članovima Katedre za nuklearnu fiziku koji su uvek bili spremni izaći u susret i pomoći studentima.

Takođe zahvaljujem kolegama iz generacije na iskrenom prijateljstvu koje će nadam se večno trajati.

Posebnu zahvalnost dugujem Marini Rakanović koja je svojim osmehom ulepšavala moje studentske dane.

Najveću podršku crpio sam iz ljubavi mojih roditelja i brata koji su uvek bili uz mene.
Hvala vam!

Sadržaj

Uvod	3
I Teorijski deo rada	5
1 Prirodna radioaktivnost	6
1.1 Radioaktivni raspad	7
1.2 Aktivnost	8
1.3 Radioaktivne ravnoteže	10
1.4 Radioaktivni nizovi	12
2 Radon	16
2.1 Fizičke i hemijske osobine radona	18
2.2 Radon u životnoj sredini	18
2.3 Radon u vodi	20
2.4 Uticaj radona na zdravlje	22
3 Merne tehnike za određivanje ^{222}Rn u vodi	25
3.1 Alfa – spektrometar RAD7	25
3.2 Quantulus 1220TM	31
3.2.1 Metoda merenja	31
4 Alfa spektrometrija tečnim scintilacionim metodom	32
4.1 Scintilacioni detektori	32
4.2 Scintilacioni materijali	33
4.2.1 Organski scintilatori	33
4.2.2 Čisti organski scintilatori	34
4.2.3 Tečni organski scintilatori	34
4.2.4 Plastični organski scintilatori	35
4.2.5 Neorganski scintilatori	35
4.2.6 Gasoviti scintilatori	36
4.2.7 Stakleni scintilatori	36
4.3 Osobine scintilatora	36
4.4 Scintilacioni procesi u koktelima	38
4.5 Rastvarači	39
4.6 Fotomultiplikatori	40
4.6.1 Primarni i sekundarni scintilatori	41
4.7 Procesi koji ometaju LSC detekciju	43
4.7.1 Pozadinsko zračenje	43
4.7.2 Prigušenje u scintilacionim brojačima	43

4.8	Luminescencija	45
4.9	Efekat statičkog elektriciteta	46
4.10	Efekat zidova.....	46
II Eksperimentalni deo rada		47
5	Quantulus 1220TM	48
5.1.1	Metoda merenja.....	50
5.2	Merenje radona u vodi LSC metodama	51
5.2.1	Dvofazna metoda	51
5.2.2	Monofazna metoda	52
5.3	Opis LSC metode.....	54
5.3.1	Uzorkovanje i laboratorijska priprema	54
5.3.2	Kalibracija sistema	55
6	Rezultati	60
6.1	Pripremanje uzorka	60
6.2	Spektri kalibracionih uzoraka.....	61
6.3	Kalibracione krive.....	62
6.4	Određivanje minimalne detektabilne aktivnosti (MDA)	65
6.5	Provera – rezultati za jednofaznu i dvofaznu metodu	68
7	Evaluacija metoda – realni uzorci.....	80
8	Zaključak	82
Literatura		84
Kratka biografija autora		88
KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA		89

Uvod

Ljudi su svakodnevno izloženi prirodnoj radioaktivnosti koja se nalazi u zemlji, vodi, vazduhu i hrani te su takva zračenja normalna i sastavni su deo naše okoline u kojoj živimo.

Prva indikacija razmatranja kako prirodna radijacija utiče na zdravlje ljudi, zabeležena je 1556. godine u istočnoj Evropi, kada je registrovan veliki broj fatalnih respiratornih bolesti rudara u Erz Mountains-u. To je uzeto kao povod da se jonizujuće zračenje ozbiljnije shvati i da se krene u merenje i izučavanje njegovog prisustva u životnoj sredini i uticaja na ljude. Početkom dvadesetog veka razvija se jasnija slika o posledicama izlaganja ionizujućem zračenju. Istraživanja vršena poslednjih decenija pokazuju da u normalnim uslovima preko 70% ukupne godišnje doze koju primi stanovništvo potiče od prirodnih izvora ionizujućeg zračenja, pri čemu je 43% uslovljeno inhalacijom i ingestijom prirodnog radioaktivnog gasa, radona ^{222}Rn , odnosno njegovih potomaka ((WHO), World Health Organization, 2008).

Radon je gas bez boje i mirisa, radioaktivran je, radiotoksičan i kancerogen ako se udiše. Radon je potomak uranijuma, prirodnog minerala u stenama i zemlji. Većina radona koji ulazi u građevine dolazi direktno iz zemlje, u neposrednom dodiru s građevinom ispod podruma ili temelja. Radon se takođe nalazi u vodi i sa svakom upotreboom vode u domaćinstvu ulazi u naše domove pa tako i u naš organizam. Radon ne možemo uočiti ljudskim čulima i sprečiti da ga ne udahnemo, a on i njegovi kratkoživeći potomci mogu biti jako opasni za ljudsko zdravlje. Naime, naučno je dokazano da je radon drugi uzročnik karcinoma pluća odmah nakon konzumiranja duvanskih proizvoda (James, 1988).

Iako je rizik od radona u pijaćoj vodi obično nizak u poređenju sa ukupnim inhaliranim radonom značajno je poznavati radiološki sastav vode. I upravo zbog potencijalnog zdravstvenog rizika pri konzumiranju vode za piće koja u sebi sadrži povećanu koncentraciju aktivnosti ^{222}Rn , posebna pažnja se posvećuje razvoju što je moguće preciznijih i pouzdanijih metoda za merenje radona u vodi, kao i usavršavanju postojećih metoda.

Tema ovog rada je upravo dodatno usavršavanje metode tečne scintilacione detekcije (LSC metode), koja se pokazala kao jedna od najpouzdanijih za merenje koncentracije aktivnosti radona u vodi. Tečni scintilacioni detektor Quantulus 1220TM je kalibriran pomoću četiri različita scintilaciona koktela (monofaznog - Ultima Gold AB i dvofaznih - Mineral Oil Scintilator, Opti Flour O i Ultima Gold F). Za svaki upotrebljeni scintilacioni koktel određena je minimalna detektibilna aktivnost. Obzirom da je kod alfa/beta spektroskopije posebno

značajno razdvajanje alfa od beta događaja u spektru, u radu je prikazan i postupak podešavanja relevantnih parametara i uticaj različitih parametara na dobijene rezultate. Izvedeni su i opšti zaključci da li je bolje koristiti monofazni (scintilacioni koktel se potpuno meša sa uzorkom vode) ili dvofazni metod (scintilacioni koktel se ne meša sa uzorkom vode koji se meri već se formiraju dve faze). Na samom kraju kalibracioni postupak je testiran na realnim uzorcima, poređenjem sa rezultatima dobijenim drugim metodom merenja radona u vodi (RAD7).

I Teorijski deo rada

1 Prirodna radioaktivnost

Svet u kome živimo radioaktiv je od svog postanka. Radionuklidi (radioaktivni elementi) se nalaze svuda oko nas a i u nama, možemo ih pronaći u zemlji, zraku, vodi, hrani, a time i u svim živim bićima. Po tome kako su nastali dele se na one koji su oduvek prisutni na Zemlji, one koji nastaju kao posledica delovanja kosmičkih zraka, te one koji su posledica ljudske tehnologije.

Radioaktivnost je spontani proces u kojem se atomsko jezgro, emitujući jednu ili više čestica ili kvanata elektromagnetskog zračenja, preobražava u drugo jezgro. Sastav jezgra se menja ukoliko ono doživi alfa ili beta raspad. Prilikom alfa raspada dolazi do emisije čestice koja u sebi sadrži dva protona i dva neutrona, baš kao i jezgro atoma helijuma. Jedan od načina raspada nestabilnih jezgara iz grupe beta emitera je emisija negativne čestice, koja nije ništa drugo do običan elektron. Nakon radioaktivnog raspada jezgro može biti u pobuđenom stanju, a na osnovno energetsko stanje najlakše prelazi emisijom gama zračenja (Krmar, 2013).

1896. godina se smatra godinom rođenja nuklearne fizike. Upravo tada je otkrivena radioaktivnost na osnovu svoga dejstva na fotografsku ploču od strane Anrija Bekerela. Bitne činjenice koje su prethodile ovom otkriću su te da je: luminiscencija već bila poznata, takođe je bila poznata fotografска tehnika i 1895. godine otkriveni su X – zraci. 1896. Bekerel saopštava na Akademiji nauka u Parizu da uran i njegove soli emituju nevidljive zrake koji, ničim izazvani, ostavljaju tragove na fotografskoj ploči. Ova pojava je nazvana prirodna radioaktivnost. Od tada, pa do danas, interes naučnika za radioaktivnost, radioaktivne elemente i njihovu primenu naglo raste. Ajnštajn je smatrao da je otkriće radioaktivnosti po svojoj revolucionarnosti ravno otkriću vatre koje je učinio preistorijski čovek.

Sve radioaktivne materije ispuštaju zrake koje deluju na živi organizam, izazivaju poremećaje, obolenja pa i smrt. Mogu se podeliti na: materije koje ispuštaju samo alfa i beta zrake i materije koje ispuštaju prirodne gama i rendgenske zrake. Zračenje je jedan od načina na koji se prenosi energija. Kada nuklearna zračenja dođu u dodir sa ma kakvom materijom, ona joj ustupe deo svoje energije, koja može da izmeni fizička, hemijska ili biološka svojstva predmeta ili žive materije. Za nuklearna zračenja kao što je rečeno postoje tri glavna tipa: alfa, beta i gama zraci. Oni se razlikuju pored ostalog i svojom sposobnošću prodiranja kroz materiju; tako su alfa zraci najmanje prodorni, dok su gama zraci najprodorniji. Jonizujuća

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

1.1 Radioaktivni raspad

Prema radioaktivnom raspadu, sva se jezgra dele u dve velike grupe: stabilna i nestabilna (radioaktivna). Granica između ove dve grupe nije definisana pošto se i jezgra koja smatramo stabilnim mogu raspadati, ali je brzina tog raspada toliko mala da se eksperimentalno teško može ustanoviti (Krmar, 2013).

Radioaktivnost je pojava, da neki element, zahvaljujući svojoj unutrašnjoj nestabilnosti, spontano iz sebe emituje prodorno zračenje u okolinu. Pri tome se taj radioaktivni element transformiše u drugi element. Putem ovog spontanog procesa nestabilna jezgra prelaze u stabilno ili stabilnije stanje uz emisiju čestice ili elektromagnetskog zračenja. Već u samom početku ustanovljeno je da se na raspad ne može uticati spoljašnjim faktorima. Verovatnoća raspada određena je isključivo prirodnom procesu koji se u njemu odvijaju i može se za dati izotop smatrati konstantom. Upravo zbog toga uvedena je veličina koja se naziva konstanta radioaktivnog raspada, a predstavlja verovatnoću da se neko jezgro raspade u jedinici vremena. Precizna merenja su pokazala da je konstanta radioaktivnog raspada karakteristika svakog pojedinačnog radiozotopa, a eksperimentalno se može odrediti kao što je dato u (Krmar, 2013):

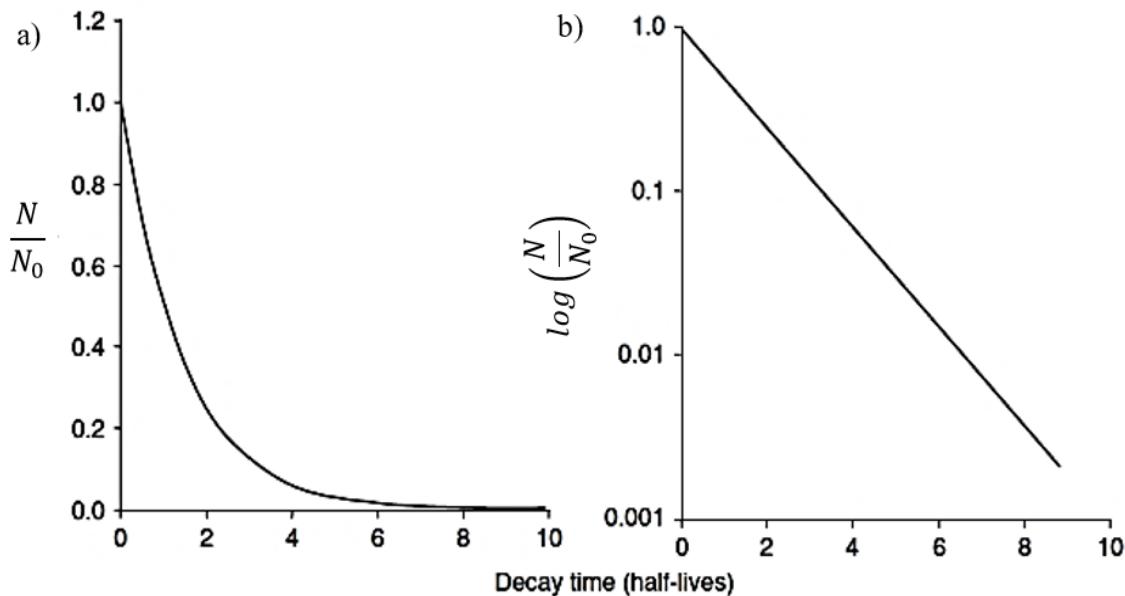
$$\lambda = \frac{\left[\frac{\Delta N}{\Delta t} \right]}{N} \quad 1.1$$

Gde je ΔN broj jezgara koji se raspao u vremenskom intervalu Δt , a N je ukupan broj radioaktivnih jezgara u posmatranom uzorku u početnom trenutku. Dakle numerička vrednost od λ izražava statističku verovatnoću raspada svakog pojedinačnog atoma u grupi identičnih atoma u jedinici vremena. Svaki radioaktivni raspad je potpuno jedinstven proces.

Da bi se radioaktivni raspad kao pojava bolje opisao, neophodno je bilo da se u toj raznolikosti pronađe nešto opšte i zajedničko za sve raspade. Upravo za to nam je poslužio čuveni eksponencijalni zakon radioaktivnog raspada:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad 1.2$$

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



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

a) linearna skala, b) semilogaritamska skala

Period poluraspada se definiše kao:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0,693}{\lambda} \quad 1.3$$

Period poluraspada spada u osnovne veličine koje moraju biti poznate za svaki radioaktivni element.

1.2 Aktivnost

Broj jezgara koji se raspadne u jedinici vremena se naziva aktivnost uzorka (A). Iz zakona radioaktivnog raspada, aktivnost se može izraziti na sledeći način:

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

Aktivnost nekog uzorka takođe opada eksponenijalno u toku vremena, što se dobija množenjem leve i desne strane zakona radioaktivnog raspada konstantom radioaktivnog raspada:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad 1.5$$

Jedinica za aktivnost je 1 *becerel* [Bq], što odgovara raspadu jednog jezgra radioaktivnog nuklida u jednoj sekundi. Uobičajeno je i korišćenje vanskemske jedinice (stare jedinice koja više nije u upotrebi) za aktivnost a to je 1 kiri (Ci), čija je vrednost $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq, a koja odgovara aktivnosti jednog grama ^{226}Ra .

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

$$a = \frac{dA}{dm}; \quad [a] = \frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \quad 1.6$$

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

$$C = \frac{dA}{dV}; \quad [C] = \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \quad 1.7$$

U eksperimentalnom delu rada posebno se pridaje značaj koncentraciji aktivnosti koja je data u jedinicama tri reda veličine manjom, $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

1.3 Radioaktivne ravnoteže

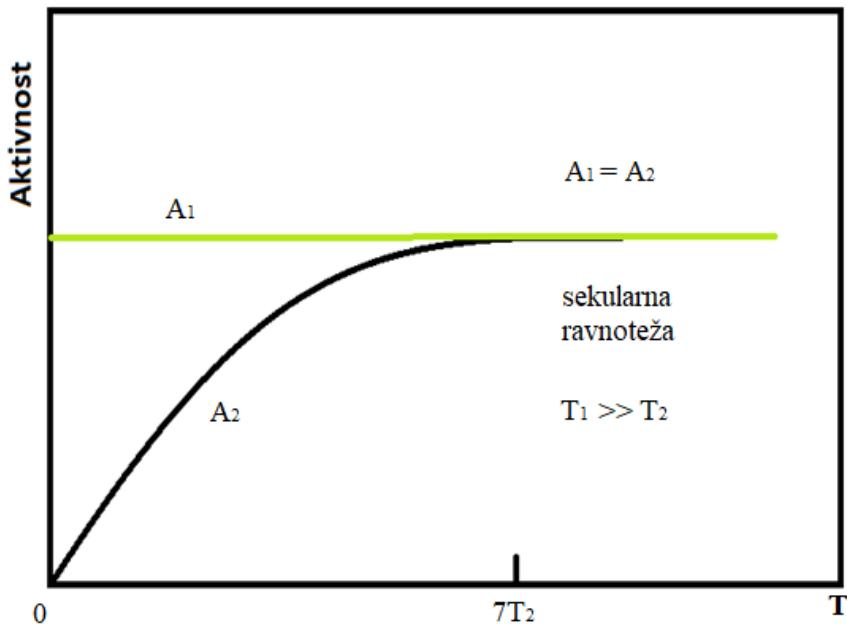
Pojam radioaktivne ravnoteže vezan je za uslov: $\frac{dN}{dt} = 0$. To je ustvari taj trenutak vremena kada se raspade onoliko atoma koliko se stvori. Strogo matematički, ovi uslovi u potpunosti nikad nisu ispunjeni, međutim stanja bliska radioaktivnim ravnotežama su moguća. Recimo, to je slučaj kada period poluraspada pretka $t_{1/2}$ teži beskonačnosti, ili je znatno veći u odnosu na period poluraspada potomka. Za ovaj tip ravnoteže može se napisati sledeći uslov:

$$\lambda_1 \ll \lambda_2 \quad 1.8$$

Tada je:

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_1 N_2 = \dots = \lambda_n N_n \quad 1.9$$

Ovaj tip radioaktivne ravnoteže se naziva sekularna ravnoteža (slika 1.2)



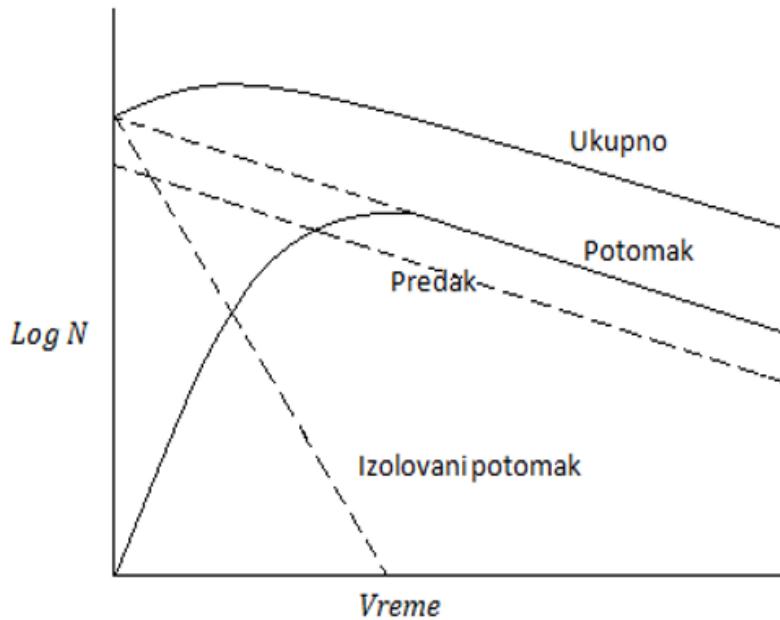
Slika 1.2 Opšti princip nastupanja sekularne (trajne) radioaktivne ravnoteže, za slučaj $T_1 \gg T_2$, gde ravnoteža nastupa nakon ~ 7 perioda puluraspada direktnog potomka

Drugi tip radioaktivne ravnoteže sledi iz uslova:

$$\lambda_1 < \lambda_2 \quad 1.10$$

tj. kada konstanta raspada λ_2 nije mnogo veća od konstante λ_1 , ali se znatno razlikuju. To je slučaj, kada je period poluraspada pretka veći od perioda poluraspada potomka. Drugi tip radioaktivne ravnoteže naziva se tranzitivna ravnoteža i glasi:

$$\lambda_1 N_1 = (\lambda_2 - \lambda_1)N_2 \quad 1.11$$



Slika 1.3 Prikaz tranzitivne ravnoteže

I treći slučaj je radioaktivni raspad bez ravnoteže i on nastaje kada je period poluraspada predaka kraći od perioda poluraspada potomka.

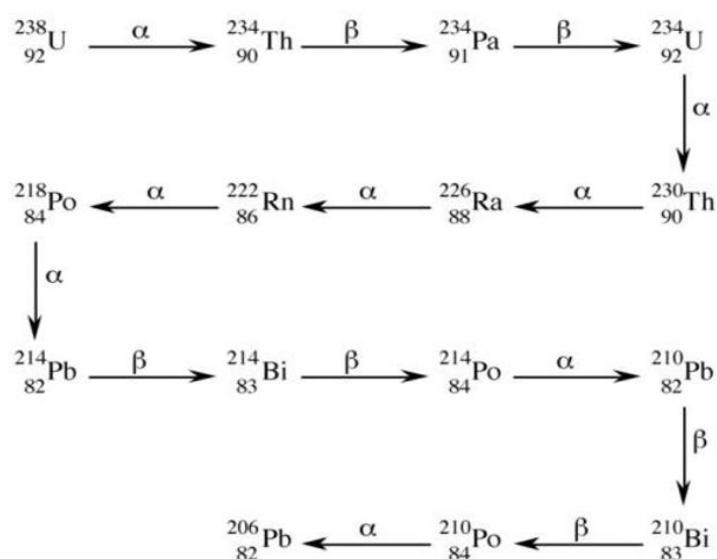
1.4 Radioaktivni nizovi

Većina prirodnih radioaktivnih izotopa pripadaju lancima uzastopnih raspada i sva jezgra u okviru jednog takvog lanca raspada čine tzv. radioaktivne nizove (serije, familije). Rodonačelnik (roditeljski izotop niza) je izotop koji stoji na vrhu niza i čijim raspadom nastaju, jedan iz drugoga, svi članovi niza (potomci). Nizovi su dobili naziv po svom rodonačelniku. Postoje tri niza: uranijum-radijumski, uranijum-aktinijumski i torijumski niz. Osim ova tri, u laboratorijskim uslovima, je putem nuklearnih reakcija stvoren i četvrti, neptunijumski niz. Osnovni procesi transformacije jezgara kod ovih nizova su alfa i beta raspad, praćeni emisijom gama zračenja. Osnovne karakteristike tri najznačajnija radioaktivna niza, date su u Tabeli 1.1 (Bikit et al, 2012).

Tabela 1.1 Neke od osnovnih karakteristika radioaktivnih nizova

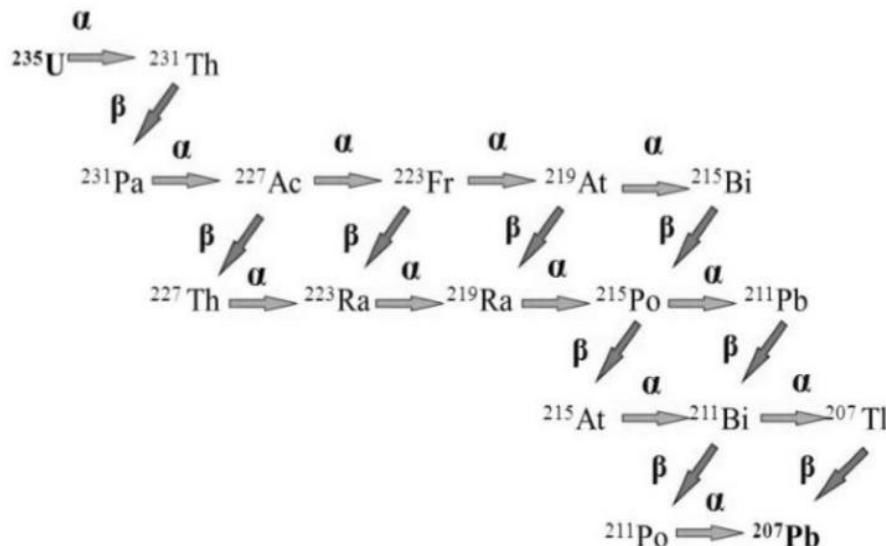
Naziv niza	Polazno jezgro	Period poluraspada (god.)	Krajnji član
torijumov	^{232}Th	$1,4 \cdot 10^{10}$	^{208}Pb
uranijum-radijumov	^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$	^{206}Pb
uranijum-aktinijumov	^{235}U	$7,2 \cdot 10^8$	^{207}Pb

Uranijumov niz počinje sa ^{238}U kao rodonačelnikom i nakon 14 transformacija (8 alfa raspada i 6 beta raspada) dolazi se do stabilnog krajnjeg proizvoda, a to je ^{206}Pb . Uranijumov niz sa naznačenim raspadima dat je na slici 1.4.



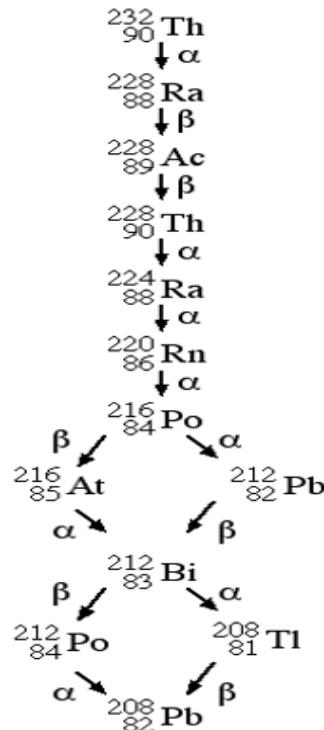
Slika 1.4 Uranijumov niz

Aktinijumov niz počinje sa rodonačelnikom ^{235}U i završava sa ^{207}Pb . Na slici 1.5 vidi se aktinijumov niz sa naznačenim raspadima.



Slika 1.5 Aktinijumov niz

Torijumov niz započinje ^{232}Th i završava se sa ^{208}Pb . Torijumov niz prikazan je na slici 1.6.



Slika 1.6 Torijumov niz

Sve tri postojeće serije su slične u tome da im je rodonačelnik dugoživeći izotop teškog elementa, a krajnji proizvod neki od stabilnih izotopa olova. Karakteristike krajnjih, stabilnih

nukleida svih nizova je što svi sadrže magične brojeve protona (82) i magične brojeve neutrona (126) ili oba. Nizovi su potpuno nezavisni i nigde se ne ukrštaju. U svakom od nizova postoji po jedan izotop elementa rednog broja 86, poznatog kao radon.

Prema načinu nastanka radionuklidi se dele na :

1. Primordijalni radionuklidi (radionuklidi oduvek prisutni na Zemlji)

Primordijalni radionuklidi su prirodni zemaljski - terestrijalni radionuklidi koji predstavljaju najznačajniji izvor jonizujućeg zračenja u životnoj sredini. Samo su radionuklidi sa periodom poluraspada uporedivim sa starošću Zemlje i njihovi produkti raspada u značajnoj meri zastupljeni u materijalima u životnoj sredini (stenama, zemljištu, vodi, ljudskom telu). U izvore ovog zračenja spadaju radioaktivni elementi: uranijum ^{235}U , uranijum ^{238}U , torijum ^{232}Th , radijum ^{226}Ra , radon ^{222}Rn ili kalijum ^{40}K . Ovi radionuklidi potiču još iz vremena formiranja Zemlje i karakteriše ih vrlo dugo vreme poluživota. Izlaganje prirodnim izvorima zračenja može biti dvojako: interno (ulazak radioaktivnih elemenata u ljudski organizam) i eksterno (preko spoljašnjeg ozračivanja). Izuzetak je gas radon, čiji je poluživot 3,8 dana i od navedenih radionuklida najznačajniji je alfa-emiter. Radon nastaje kao karika u lancu raspada uranijuma ^{228}U . U gasovitom je obliku i izlazi iz stena koje sadrže uran (većinom u tragovima), a najviše u stenama iz rudnika uranijuma.

2. Kosmičke radionuklide

Značajan izvor prirodne radijacije je i kosmičko zračenje. Primarno kosmičko zračenje je galaktičkog i solarnog porekla, a sastoji se od nanelektrisanih čestica veoma visoke energije (0,01 – 10 GeV). Do zemljine površine ono veoma retko dospeva pošto nestaje u interakcijama u atmosferi u kojima se stvara sekundarno zračenje i kosmogeni radionuklidi. U gornjim slojevima atmosfere nuklearnim reakcijama kosmičkog zračenja sa jezgrima azota i kiseonika dolazi do stvaranja nekolicine radioaktivnih jezgara, kao što su ugljenik ^{14}C i berilijum ^{7}Be . Nakon toga dolazi do njihovog ravnomernog raspoređivanja putem atmosferskih transportnih procesa, te na taj način i oni daju svoj doprinos ukupnoj prirodnoj radioaktivnosti. U kosmogene radionuklide spadaju i berilijum ^{10}Be , aluminijum ^{26}Al , hlor ^{36}Cl , kripton ^{80}Kr , ugljenik ^{14}C , silicijum ^{32}Si , argon ^{39}Ar , natrijum ^{22}Na , sumpor ^{35}S , argon ^{37}Ar , fosfor ^{33}P , ^{32}P , magnezijum ^{38}Mg , natrijum ^{24}Na , sumpor ^{38}S , silicijum ^{31}Si , fluor ^{18}F itd.

Intenzitet kosmičkog zračenja varira sa nadmorskom visinom: stanovništvo koje živi u visokim planinskim regionima može primiti dva do tri puta veće doze od onih na nivou mora.

Prevoz avionom takođe dovodi do ozračivanja putnika kosmičkim zračenjem. Međutim, kosmičko zračenje relativno malo doprinosi internom izlaganju (Bikit et al, 2004/2005).

3. Antropogene radionuklide

Osim prirodnih radioizotopa, u atmosferi, vodi i tlu se mogu naći i neki radionuklidi koji su nastali nakon ljudskih (tehnoloških) aktivnosti. Veštačka radioaktivna jezgra ne postoji u prirodi – ona su proizvedena u nuklearnim reakcijama i do sada postoji evidencija o više od 2000 takvih jezgara (Krmar, 2013). Najveći broj ovih radionuklida imaju veoma kratak period poluraspada i predstavljaju realnu opasnost po ljudsku populaciju neposredno nakon njihovog nastanka u različitim procesima. Manji broj ovih radionuklida imaju velik period poluraspada i putem vazdušnih i vodenih strujanja se transportuju na velike razdaljine da bi se konačno istaložili. Ovi se radioizotopi mogu naći i u zemljištu.

Od 60-tih godina ovog veka kao značajan problem pojavljuju se veštački izvori jonizujućeg zračenja. Prema podacima UNSCEAR-a iz 1982. godine usled probnih nuklearnih eksplozija u stratosferu je ispušteno $9.6 \cdot 10^{17}$ Bq, što je nakon stratosferskog taloženja izazvalo globalnu kontaminaciju biosfere radionuklidima kao što su cezijum ^{137}Cs i stroncijum ^{90}Sr (Forkapić, 2013).

2 Radon

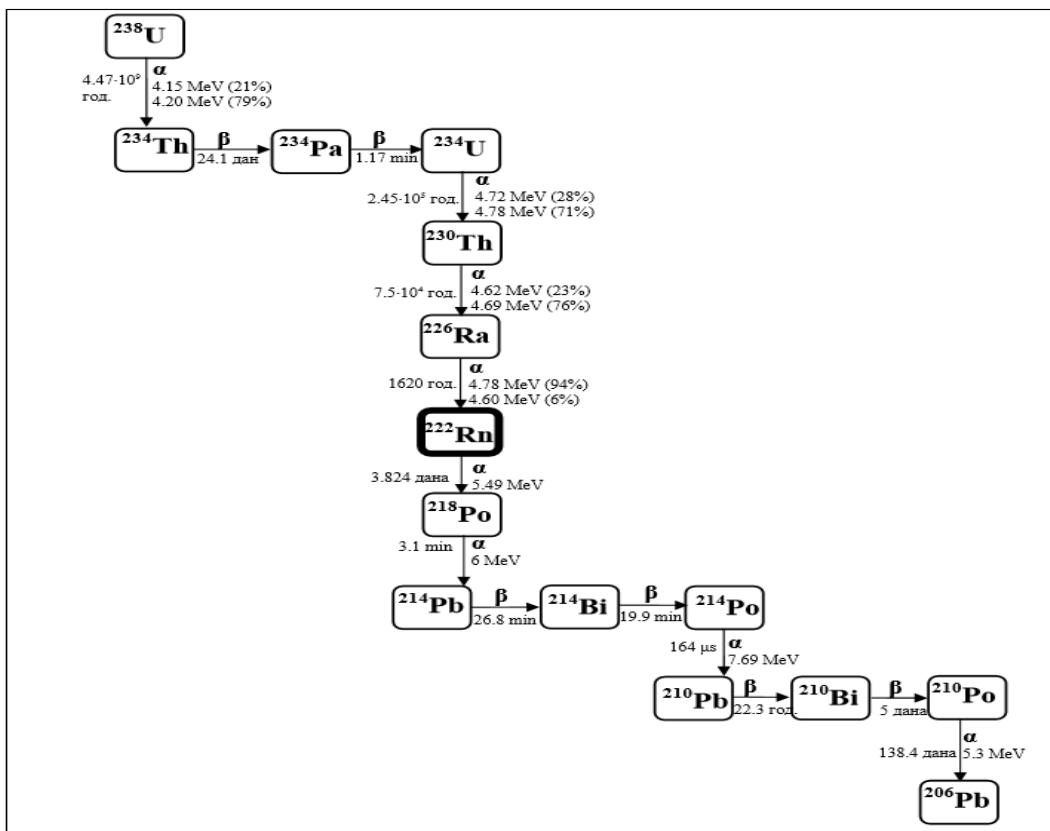
Iza otkrića radona i njegovog imena krije se zanimljiva priča u kojoj je učestvovalo više poznatih naučnika. 1899 godine Ernest Rutherford and Robert B. Owens otkrili su radon kao peti radioaktivni element. Takođe tokom 1899. godine Pierre and Marie Curie primetili su da je gas emitovan od radijuma ostao radioaktiv u mesec dana. U 1900. godini Friedrik Ernest Doron je otkrio da radijum $^{226}\text{Ra}_{88}$ emanira gas, koji je isprva nazvao „Nitron“ (od latinske riječi nitens koja znači sijati). Ramasay i Robert Gray izolovali su radon, izračunali njegovu gustinu i konstatovali da je to najteži poznati gas. Ovaj gas je kasnije od strane IUPAC (International Committee for Chemical Elements and International Union of Pure and Applied Chemistry) nazvan „radon“ 1923. godine. U periodnom sistemu elemenata, svi elementi većeg rednog broja od 83 su radioaktivni. Većina tih radioaktivnih elemenata pripadaju jednom od tri osnovna niza čiji su rodonačelnici ^{235}U , ^{238}U i ^{232}Th . Ako uzmemo u obzir moguće transformacije jezgra koje imaju za posledice radioaktivno α , β i γ zračenje, možemo objasniti vezu između elemenata niza od njihovog rodonačelnika do zadnjeg člana, stabilnog potomka, koji se dalje ne raspada. Zadnji stabilni član u sva tri niza je jedan od izotopa olova. Ono što je nama interesantno i što je zajedničko za sva tri niza je da imaju jedan od izotopa gasa radona (^{222}Rn , ^{219}Rn i ^{220}Rn)

Radon je inertan gas, koji kad se formira u Zemljinoj kori u nekoj od radioaktivnih nizova, slobodno difunduje iz zemljišta u atmosferu. Radon i njegovi izotopi pojavljuju se u sledećim radioaktivnim nizovima:

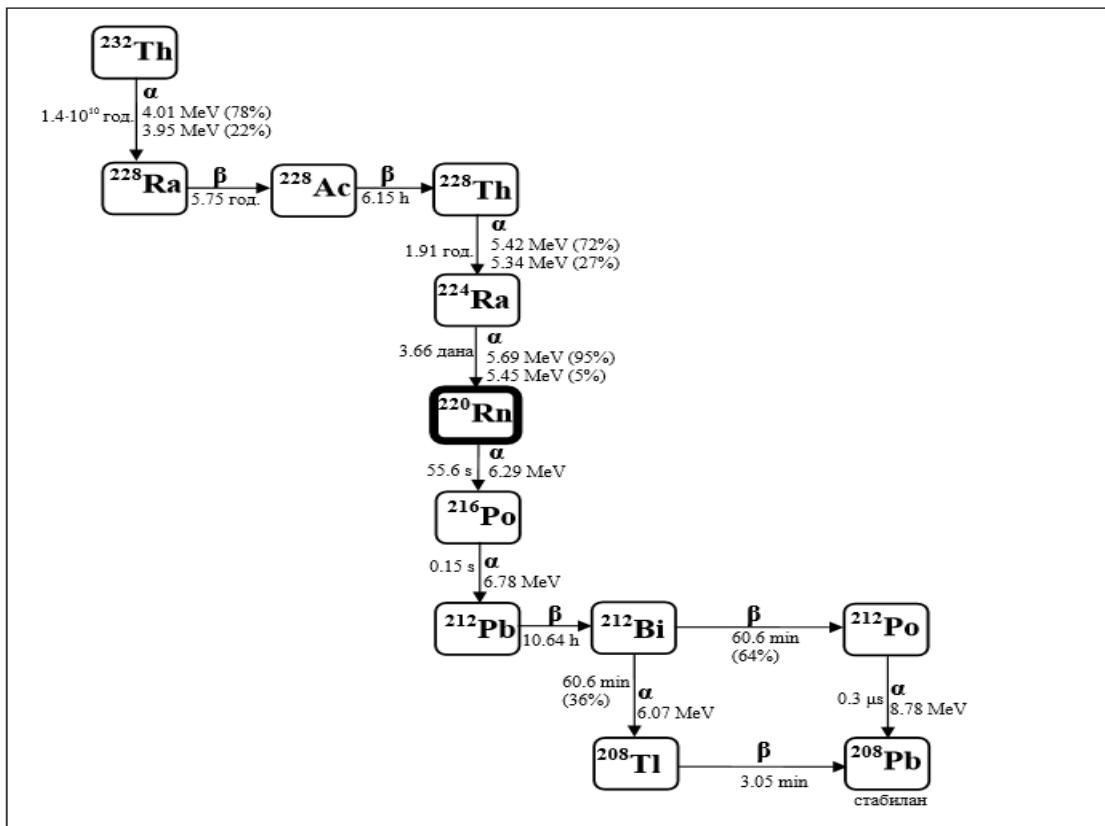
- Radon nastaje u uranijumskom nizu i ima poluživot 3,825 dana (^{222}Rn)
- Toron potiče iz niza torijum i ima poluživot 55,6 s (^{220}Rn)
- Aktinijum nastaje u aktinijumovom nizu i ima poluživot 4,02 s (^{219}Rn)

Za razliku od prva dva navedena izotopa, aktinon (^{219}Rn) je uglavnom zapostavljen zbog veoma kratkog vremena poluraspara koji jako ograničava njegovu migraciju, a takođe i zbog relativno malog udela izotopa ^{235}U u prirodnom uranu (0.72%) (Levinson i Coetzee, 1978). Osim ovih izotopa radona, postoji još 23 izotopa radona i većina se raspada alfa raspadom, takođe mogući su i beta raspadi ili zahvat orbitalnog elektrona (Wilkening, 1990).

Slike 2.1 i 2.2 prikazuju šeme raspada urana ^{235}U i torijuma ^{232}Th . Oba niza se završavaju stabilnim izotopima olova ^{206}Pb i ^{208}Pb , respektivno.



Slika 2.1 Šema radioaktivnog raspada urana ^{238}U , Grana alfa-raspada bizmuta ^{214}Bi je izostavljena zbog male verovatnoće (0.04 %)



Slika 2.2 Šema radioaktivnog raspada torijuma ^{232}Th

2.1 Fizičke i hemijske osobine radona

U periodnom sistemu elemenata radon je element sa atomskim brojem 86 i sa simbolom Rn. Rečeno je da nastaje u uranijumskom nizu koji počinje izotopom urana ^{238}U a završava se stabilnim izotopom olova $^{206}_{82}\text{Pb}$. Radon je u ovoj seriji jedini radioaktivni gas i to sa najdužim periodom poluraspada. Nastaje α - raspadom radijuma $^{226}_{88}\text{Ra}$ i spada u α -emitere, tj. posle 3,82 dana on se raspada i emituje α -česticu energije $E=5,5\text{MeV}$. Radonovi kratkoživeći potomci imaju veliku moć jonizacije. Istraživanja iz oblasti epidemiologije su pokazala je prisustvo radona ^{222}Rn u životnoj sredini jedan od najvažnijih uzročnika malignih obolenja pluća. I to je osnovni razlog monitoringa ovog radionuklida u vazduhu, vodi i zemljisu.

Radon je bezbojan gas, bez mirisa i ukusa, čija je gustina $9,7\text{ g/l}$ u standardnim uslovima, što ga čini najtežim gasom u prirodi. Atom radona ima stabilnu elektronsku konfiguraciju sa popunjениm ljkuskama što je i razlog njegovog ponašanja poput plemenitih gasova. Elektronska konfiguracija poslednja dva nivoa atoma radona je: $5s^2\ 5p^6\ 5d^{10}\ 6s^2\ 6p^6$. Ovakva elektronska konfiguracija radona sugerise veoma ograničenu hemijsku aktivnost, međutim zbog relativno niske energije jonizacije od $10,7\text{ eV}$ -a ipak je moguća poneka interakcija (Wilkening, 1990).

2.2 Radon u životnoj sredini

Radon se stvara u mineralima, kao direktni potomak radijuma ^{226}Ra koji nastaje u prirodnom radioaktivnivnom nizu urana ^{238}U . Zbog svoje velike rasprostranjenosti u životnoj sredini, radon ^{222}Rn , smatra se drugim najvažnijim uzročnikom malignih obolenja pluća (Mitev et al, 2012). Zbog toga se velika pažnja posvećuje monitoringu radionuklida, radona, u vazduhu, u pijaćoj i podzemnoj vodi, kao i zemljisu.

Alfa-raspadom radijuma ^{226}Ra nastaje radon ^{222}Rn . Činjenica da je koncentracija radona u mineralnim zrnima mnogo veća od koncentracije u porama između zrna, ukazuje na to da samo mali procenat stvorenog radona ima mogućnost da se osloboди i napusti zrna u kojima nastaje. Vrednosti koncentracija radona koje se mere u atmosferi, na otvorenom prostoru, su najčešće manje od 10 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 2006), što je izuzetno malo u poređenju sa vrednostima koje se mogu izmeriti u zemnom gasu i čak za nekoliko redova veličine manje od koncentracija u unutrašnjosti tipičnih minerala. Tabela 1.2 prikazuje poređenje tipičnih koncentracije radona u različitim sredinama (Fleischer, 1997).

Tabela 2.1 Tipične koncentracije ^{222}Rn (Flescher, 1997)

Lokacija	Koncentracija (broj atoma u cm^3)
Vazduh iznad okeana	0,04
Vazduh iznad površine zemlje	4
Tipične kuće u SAD	20
Vazduh u zemlji	20000
Unutrašnjost tipičnih minerala	500000

Radonovi kratkoživeći potomci: ^{218}Po ($T_{1/2} = 3,05$ min), ^{214}Pb ($T_{1/2} = 28,6$ min), i ^{214}Po ($T_{1/2} = 164$ μs), imaju veliku moć jonizacije. Oni se grupišu u klastere malih dimenzija dijametra 0,5 nm i često se pripajaju molekulima vode ili drugim molekulima u vazduhu do dimenzija od 0,5 nm do 5 nm. Putem rekombinacije sa negativnim jonima nepripojeni radonovi potomci se delimično neutralizuju, ovaj proces najviše zavisi od koncentracije jona u vazduhu i vlažnosti vazduha. U drugom slučaju potomci se pripajaju česticama aerosola formirajući pripojene radonove potomke (dijametra veličine od 20 do 500 nm). Njihovom difuzijom kroz vazduh i stalnim mežusobnim sudaranjem doalzi do njihovog spajanja i raspadanja ili taloženja na okolne površine.

U domaćinstvima glavni izvor radona je ^{226}Ra prisutan u zemljištu, građevinskim materijalima i vodi iz česme. S obzirom da je radon težak gas, ima tendenciju da difunduje iz građevinskog materijala i zemljišta na kom je sagrađen objekat kroz pukotine zidova i da se nagomilava i taloži u zatvorenima prostorima i podrumima kuća, gdje može predstavljati opasnost po zdravlje ljudi. Faktor koji najviše utiče na koncentraciju radona u zatvorenim prostorijama, do drugog sprata je građevinsko zemljište (heminski sastav, fizičke i vodno-mehaničke osobine, prvenstveno prozornost), a na višim spratovima je značajniji uticaj građevinskog materijala. Veliki uticaj takođe imaju i kvalitet gradnje, tip konstrukcije, ventilacija, kao i vremenski uslovi i sezonske promene, stoga se najveća pažnja posvećuje merenjima radona u vazduhu unutar prostorija, a u nastavku biće reči samo o merenju sadržaja radona u vodi.

2.3 Radon u vodi

Podzemna voda na svom putu kroz zemljinu koru prolazi pored stena koje sadrže radionuklide i tu preuzima radijum i radon koji je lako rastvorljiv u vodi. Većina radona se odmah oslobodi kada voda dođe u dodir sa vazduhom, tako da površinske vode imaju znatno manje rastvorenog radona. Površinske vode sadrže niske koncentracije aktivnosti radona u proseku manje od 4 Bq l^{-1} . Oslobođeni radon povećava koncentraciju u zatvorenim prostorijama i odgovoran je za izazivanje kancera pluća, dok manja količina radona koji ostaje u vodi je odgovorna za kancer želuca. Najveće koncentracije radona se mogu naći u vodi koju uzimamo iz dubokih bunara. Koncentracije koje mogu biti izmerene u podzemnim i bunarskim sistemima su i do 10^4 Bql^{-1} (L' Annunziata, 2012). Bitno je spomenuti da prosečna koncentracija ^{222}Rn u podzemnim vodama iznosi 20 Bq l^{-1} (WHO, 2008), a može varirati od $3 - 80000 \text{ Bq l}^{-1}$ (Appleton, 2005). Dok voda koju koristimo iz gradskih vodovoda sadrži znatno manje koncentracije radona, jer tehnološkim postupkom čišćenja i prerade vode dolazi do emanacije radona u dodiru sa vazduhom, tako da veoma male količine ostanu rastvorene u vodi. Koncentracija radona u flaširanim piјaćim vodama najviše zavisi od porekla vode, tj. dubine sa koje se ispumpava voda i vrsta zemljišta kroz koju voda prolazi na svom putu do tačke ispumpavanja.

Jedan od najbitnijih faktora koji utiče na izvor i distribuciju radona u vodi su geološke karakteristike. Različite distribucije radionuklida zbog promenljivih procesa taloženja u sedimentnim stenama i formiranja magmatskih i metamorfnih stena uočene su kod različitih geoloških formacija. Otpuštanje radona iz stena i zemljišta dominantno zavisi od vrste minerala u kojima su prisutni radijum i uranijum (Appleton, 2005). Povišene koncentracije radona često se mogu naći u podzemnim vodama koje su u dodiru sa granitnim stenama, škriljicama, krečnjakom pa često i peščarama itd.

Već je spomenuto da koncentracija radona zavisi od vremenskih uslova i sezonskih promena, pa je tako primećeno da su više koncentracije radona u vodama za vreme proleća. Veći prliv vode rastvara radon iz veće mase stena uz brži transport radona (Todorović et al, 2015). Radon se dobro rastvara u vodi i može migrirati sa podzemnom vodom duž pukotina. Na njegovu migraciju iz podzemnih voda do površine zemlje utiču: hidrogeološka svojstva stena, putanja cirkulisanja podzemne vode, temperatura, pritisak, prisustvo CO_2 ili drugih rastvorenih gasova i prisustvo ^{226}Ra i ^{238}U .

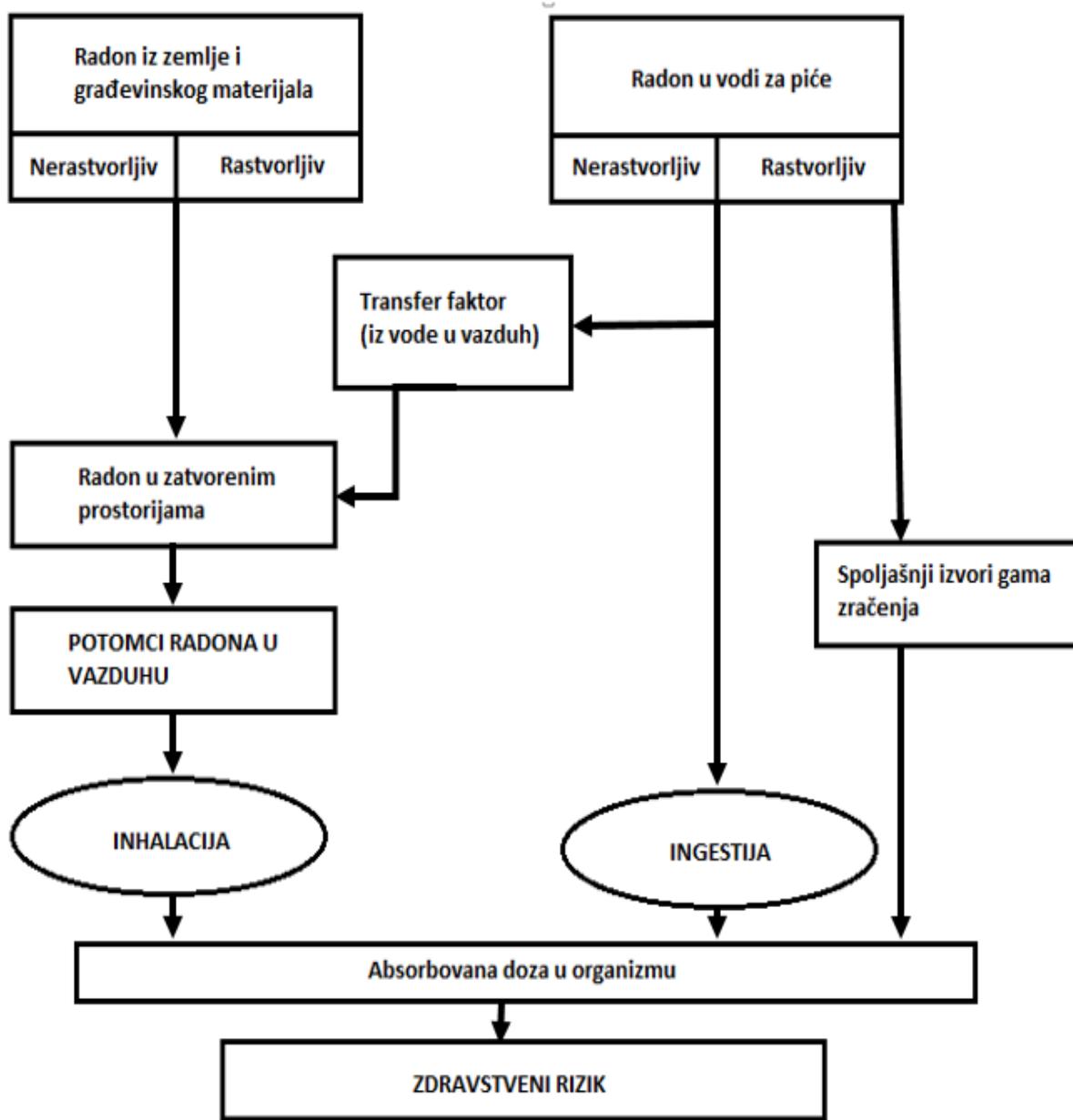
Čest je slučaj da analizirani uzorci termalnih i mineralnih voda pokazuju visoke sadržaje ^{222}Rn , ali ne i visoke koncentracije ^{226}Ra i ^{238}U i obrnuto. Upravo zbog toga čini se da je nemoguće postaviti korelaciju između njihovih koncentracija. Najveći uticaj na korelaciju imaju granice rastvorljivosti. Granice rastvorljivosti U i Ra u većini podzemnih voda mnogo su niže u odnosu na radon. Takođe niske koncentracije radijuma mogu dovesti do visokih koncentracija radona ukoliko je radijum adsorbovan na površini mineralnih zrna (Todorović et al, 2015).

Bitno je spomenuti tehnike i probleme uzorkovanja koje u velikoj meri doprinose mernoj nesigurnosti određivanja koncentracije aktivnosti radona u vodi. S obzirom da radon poseduje osobinu da lako difunduje, pri svakom kontaktu vode sa vazduhom dolazi do gubitka radona. Velika pažnja se u svim naučnim radovima posvećuje upravo samom načinu uzorkovanja, te se traži ona tehnika koja bi dala najbolje rezultate. Pri uzimanju uzorka, bilo bi pogodno da se uzorci sipaju direktno u boce u kojima će se i vršiti merenje. Ukoliko se voda presipa iz boca u merne posude, sasvim je sigurno da će se određeni deo radona izgubiti u kontaktu sa vazduhom. Takođe je bitan i izbor samih bočica za uzorkovanje. U slučaju korišćenja plastičnih boca, postoji veća verovatnoća da radon emanira, dok se u slučaju staklenih mernih boca sasvim sigurno može tvrditi da će se radon duže zadržati unutar same zapremine boćice. Tokom transporta i skladištenja uzorci treba da budu na temperaturi ispod temperature vode u momentu skupljanja uzorka – "originalna" temperatura (ali iznad 0°C) dok se ne započne merenje. Kontejner treba da bude zaštićen i čvrsto zatvoren. Takođe, treba da bude propisno upakovano kako bi se sprečilo bilo kakvo curenje vode. Period transporta i skladištenja treba da bude što je moguće kraći, s obzirom na kratak period poluraspada radona-222, očekivanu koncentraciju aktivnosti i granicu detekcije merenja korišćene opreme. Pri sticanju u laboratoriju, uzorci bi trebalo da se drže na temperaturi ispod originalne temperature (ali iznad 0°C), ukoliko se ne šalju odmah na analizu. Preporučeno je da se uzorci analiziraju što pre nakon vremena posticanja ravnoteže radona i njegovih potomaka. Iskustvo je pokazalo da vreme između uzorkovanja i analize uzorka ne bi trebalo da bude duže od 48h (Water Quality – Radon 222, 2012).

Značaj monitoringa radona u vodi ogleda se u: Sprovodenju zaštita mera od zračenja, primeni radona kao obeleživača u hidrologiji i okeanografiji, dobijanju informacija o poreklu podzemnih voda, poroznosti stena, dinamici podzemnih voda, istraživanju rudnika, predviđanju zemljotresa na osnovu geofizičkih istraživanja i praćenja koncentracije radona itd (Todorović et al, 2015; Miklavčić et al, 2008).

2.4 Uticaj radona na zdravlje

U prirodi ^{222}Rn se nalazi u zemljištu, vodi i vazduhu. Njegov najznačajniji nestabilni izotop ^{222}Rn je alfa emiter ($E_{\alpha 1} = 5,489 \text{ MeV}, I_{\alpha 1} = 99,9\%$; $E_{\alpha 2} = 4,986 \text{ MeV}, I_{\alpha 2} = 0,1\%$) sa periodom poluraspada 3,824 dana i nastaje alfa raspadom radijuma ^{226}Ra koji pripada radioaktivnom nizu ^{238}U . Na slici 2.3, šematski je prikazana rasprostranjenost radona i njegov uticaj na organizam.



Slika 2.3 Rasprostranjenost radona i njegov uticaj na organizam

Referentna granica koncentracije aktivnosti radona u vodi iznosi 100 Bq l^{-1} (EUROPEAN COMMISSION, 2001; Wallstrom, 2001). Sjedinjene Američke države su 1991. godine definisale dozvoljenu granicu koncentracije radona ^{222}Rn u vodi za piće $11,1 \text{ Bq l}^{-1}$, a 1996. godine maksimalnu granicu, koja iznosi 148 Bq l^{-1} (US Environmental Protection Agency, 1999). U Srbiji ne postoji zakonska regulativa za individualno prisustvo ovog radionuklida u vodi. Istraživanja rađena u svetu pokazuju da srednja godišnja doza koju primi stanovništvo inhalacijom radona, $1,26 \text{ mSv}$, predstavlja praktično polovinu ukupne srednje doze primljene iz svih prirodnih izvora radijacije ($2,4 \text{ mSv}$), i dvostruko veću dozu primljenu iz svih veštačkih izvora zračenja ($0,6 \text{ mSv}$) (UNSCEAR, 2008).

Izloženost radonu oralnim putem može se javiti kao posledica rastvorenog radona u vodi. Radioaktivni raspad radona u vodi proizvodi njegove potomke, pa će unošenje vode koja sadrži rastvoreni radon rezultvati i ingestijom njegovih potomaka. Radon se apsorbuje u želucu i tankom crevu, mada se apsorpcija može javiti i u debelom *crevu* (Ishikawa, 2003; Khursheed, 2000). Domaćinstva koja imaju privatne bunare izložena su visokim dozama radona, dok se u gradskom vodovodu prečišćavanjem vode radon uklanja i tako se smanjuje njegova koncentracija.

Upotreba vode na samom izvorištu je rizična. U tom slučaju koncentracija radona, koji je dospeo u vodu iz zemljišta i stena u kojima se raspadaju izotopi ^{226}Ra (Jowzaee, 2013), ne uspeva spasti na željenu koncentraciju. U slučajevima kretanja i prečišćavanja vode, koncentracija radona naglo opada i smanjuje se zdravstveni rizik. I zato je bitno kontrolisati koncentracije radona u vodama na izvorištima i javnim česmama kako bi se utvrdilo da li su bezbedne sa radiološkog aspekta. Inhalacija ^{222}Rn koji se nalazi rastvoren u povišenim koncentracijama u vodi za piće izaziva 89% kancera (US Environmental Protection Agency, 1999). Inhalacija radonovih potomaka može dovesti do njihove nehomogene depozicije na zidovima respiratornog trakta čoveka i ozračivanja bronhijalnog epitela, što povećava rizik raka pluća. Od dijametra udahnutih okolnih čestica aerosola kojima se uglavnom pripajaju potomci zavisi doza primljena inhalacijom radonovog gasa. Takođe je utvrđeno da direktno unošenje ^{222}Rn i njegovih potomaka prisutnih u piјačoj vodi nosi ozbiljne rizike za razvoj kancera želuca, u nekim slučajevima i kancera debelog creva i jetre i to upravo spada u onih preostalih 11% kancera (US Environmental Protection Agency, 1999). Domet α -čestica emitovanih iz ^{222}Rn i njegovih potomaka u tkivima je $40 - 70 \mu\text{m}$, zavisno od njihovih energija. Ono što je paradoksalno jeste da se voda u banjama sa povišenom koncentracijom radona ponekad koristi

u terapeutske svrhe, namernim izlaganjem ljudi prirodnoj radijaciji. Stohastički efekti povremenog izlaganja ljudi niskim dozama još nisu sasvim istraženi.

Efektivna doza E primljena pri ingestiji radona i njegovih potomaka odnosi se na želudačno tkivo i određuje se na godišnjem nivou (Somlai et al, 2007):

$$E [\text{Sv}] = K \cdot C \cdot KM \cdot t \quad 2.1$$

gde su:

K – konverzionalni faktor primljene doze pri ingestiji ^{222}Rn , iznosi $10^{-8} \text{ Sv Bq}^{-1}$ za odrasle, a $2 \cdot 10^{-8} \text{ Sv Bq}^{-1}$ za decu (UNSCEAR, 1993);

C – koncentracija aktivnosti ^{222}Rn [Bq l^{-1}];

KM – faktor konzumacije vode, iznosi 2 [l dan^{-1}];

t – vreme trajanja konzumiranja vode, uzima se da je 365 [dan] (WHO, 2004).

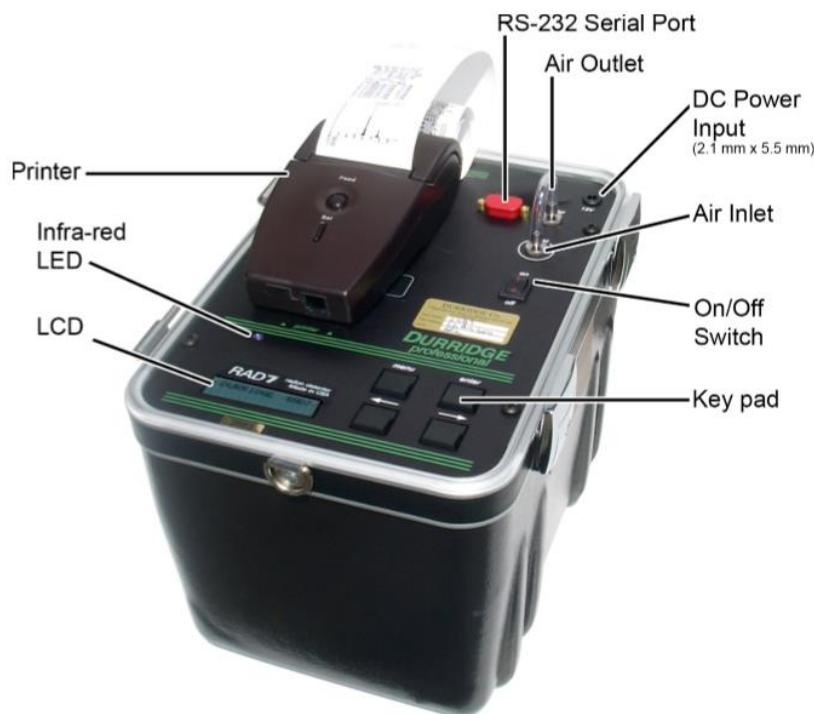
Procenjuje se da je godišnja efektivna doza koju primi plućno tkivo prilikom inhalacije radona prisutnog u vodi sa koncentracijom aktivnosti 1 Bql^{-1} $2,5 \mu\text{Sv god}^{-1}$ (Binesh et al, 2012; Pourhabib et al, 2011). Iako je Radon ^{222}Rn dominantan prirodni izvor radijacije, u Srbiji još uvek ne postoji sistematizacija podataka o nivou izloženosti populacije radonu (Žunić et al, 2009).

3 Merne tehnike za određivanje ^{222}Rn u vodi

Postoji više tehnika i metoda koje se koriste za određivanje aktivnosti radona u vodi. U ovom radu biće opisane sledeće tehnike: alfa spektrometrija i tehnika merenja na tečnom scintilacionom detektoru. Posebna pažnja posvetiće se tečnom scintilacionom detektoru za merenje ^{222}Rn u vodi, čija je kalibracija izvršena u sklopu ovog rada.

3.1 Alfa – spektrometar RAD7

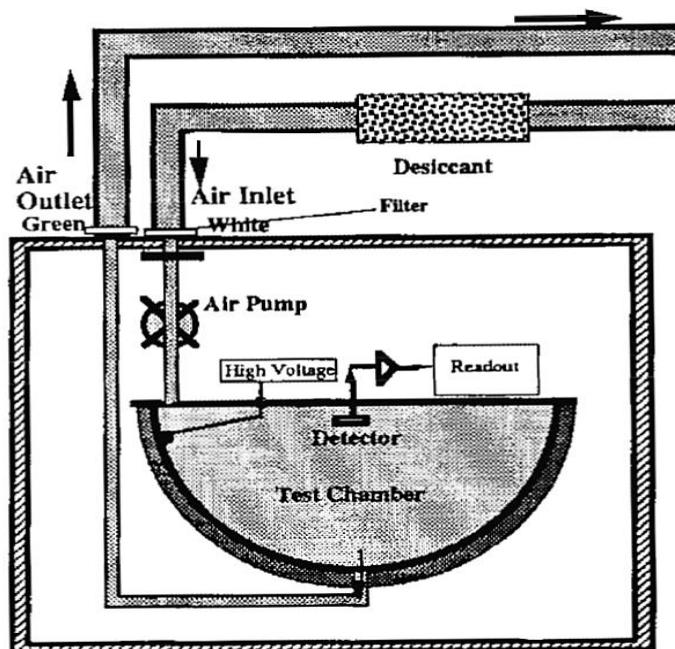
Alfa spektrometar koji može da se koristi za merenje koncentracije radona u vodi, vazduhu i zemlji naziva se RAD7. Ovaj uređaj je mobilan zahvaljujući svom baterijskom napajaju i kompaktnom dizajnu. Moguće ga je koristiti na terenu, ne samo u laboratorijskim uslovima. To je veoma bitno za merenja koja je moguće izvoditi samo na licu mesta (koncentracija radona u tlu, podzemnim prostorijama, traženja pukotina ...).



Slika 3.1 Spoljni izgled uređaja

Osnova ovog uređaja je polusferna komora zapremine 0,7 litara obložena sa unutrašnje strane materijalom koji je dobar električni provodnik. U centru polusfere se nalazi ravni

silicijumski α detektor koji je jonski implantiran. Visoki napon održava razliku potencijala između unutrašnjeg provodnika i detektora od 2 kV do 2,5 kV, stvarajući na taj način električno polje unutar zapremine detektorske komore. Funkcija električnog polja je da usmerava pozitivno nanelektrisane čestice ka površini silicijumskog detektora. Automatska pumpa omogućava protok suvog vazduha brzinom od 1 l/min kroz komoru, na ulazu u komoru postoji filter koji sprečava ulazak radonovih potomaka u komoru i time omogućava merenje samo koncentracije radona u komori dok svi njegovi potomci ostaju nataloženi na filteru. Jezgra radona ^{222}Rn koja se nalaze unutar komore se raspada na jezgra polonijuma ^{218}Po , ova jezgra polonijuma su pozitivni joni i ona se električnim poljem navode na silicijumski α detektor na kome se talože. Nataloženi polonijum ^{218}Po se raspada α i β raspadom, a čestica se detektuje u zapremini detektora sa tačno određenom energijom α čestice koja nastaje raspadom polonijuma ^{218}Po , ta energija je 6,03 MeV. Svi nastali β raspadi se neće detektovati, a drugi α raspadi se detektuju, ali sa drugom upadnom energijom. Alfa čestice nastale raspadom radona ^{222}Rn u vazduhu unutar zapremine komore se neće detektovati, jer nastaju u vazduhu a ne na površini detektora, jer na površini se ne talože atomi radona jer su hemijski inertni i električno neutralni i ne mogu biti privučeni električnim poljem. Principijelna šema unutrašnjosti uređaja koji ćemo koristiti u našem merenju je data na sledećoj slici:



Slika 3.2 Šema komore za detekciju zračenja

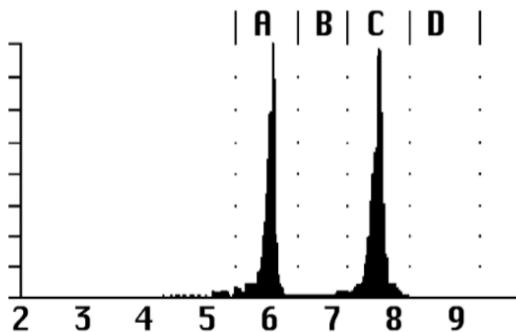
U našem slučaju gde merimo koncentraciju radona ^{222}Rn u uzorcima vode, osnovnom uređaju RAD7 je potrebno dodati posebne adaptere i dodatke koji omogućavaju takvu vrstu merenja. Koristi se sistem za pumpanje vazduha u posudu sa uzorkom vode. To je zatvoren sistem i u njemu je zapremina vazduha i vode konstantna i nezavisna od protoka vazduha. Konfiguracija i modifikacija uređaja RAD7 koja se koristi za merenja radioaktivnosti uzorka vode je prikazana na sledećoj slici:



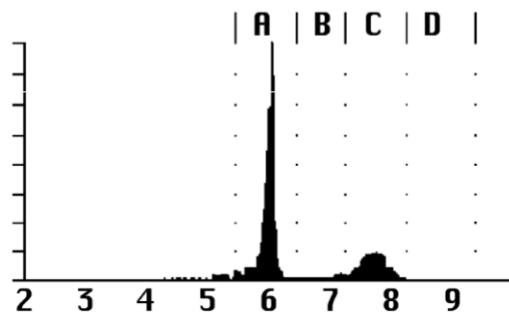
Slika 3.3 Uredaj za merenje radona u uzorcima vode

Sistem veoma brzo dostiže ravnotežu, posle 5 minuta nema više radona koji bi se mogao izdvojiti iz uzorka sa vodom. Efikasnost sistema je veoma velika i ona je oko 99% za uzorak od 40 ml i oko 94% za uzorak od 250 ml. Ono što je veoma bitno za ovo merenje je održavanje relativne vlažnosti u komori i to mora da se proverava konstantno tokom čitavog merenja. Relativnu vlažnost treba održavati konstantno ispod 10%, ukoliko relativna vlažnost dostigne veću vrednost, merenja nisu relevantna, merenje se odmah prekida i unutrašnjost uređaja se mora produvati kako bi se relativna vlažnost dovela do prihvatljivog nivoa. Ukoliko se merenje ne vrši odmah po uzorkovanju vode, potrebno je izvršiti korekciju rezultata merenja na raspad, jer će koncentracija radona konstantno opadati u uzorku usled raspada jezgra radona (period poluraspada 3,824 dana). Način uzorkovanja radona iz vode, vazduha i tla, kao i samo rukovanje ovakvim uređajima propisani su standardnim procedurama međunarodnih agencija (standardni protokol EPA 402R-92-004).

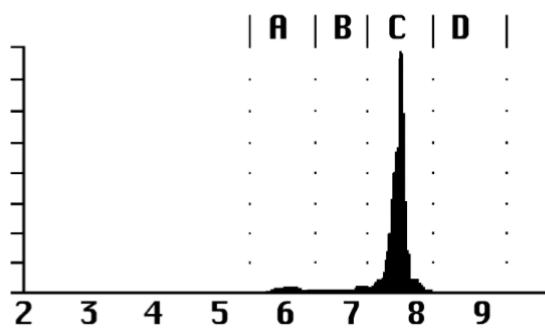
Velika prednost uređaja RAD7 je mogućnost preciznog prikazivanja alfa spektara. To je omogućeno grupisanjem izmerenih energija u osam „prozora“, od kojih svaki „prozor“ pokriva tačno određene energetske nivoe. Grafičko prikazivanje tih spektara nam omogućava jednostavno tumačenje rezultata, što se može videti na sledećim primerima spektara:



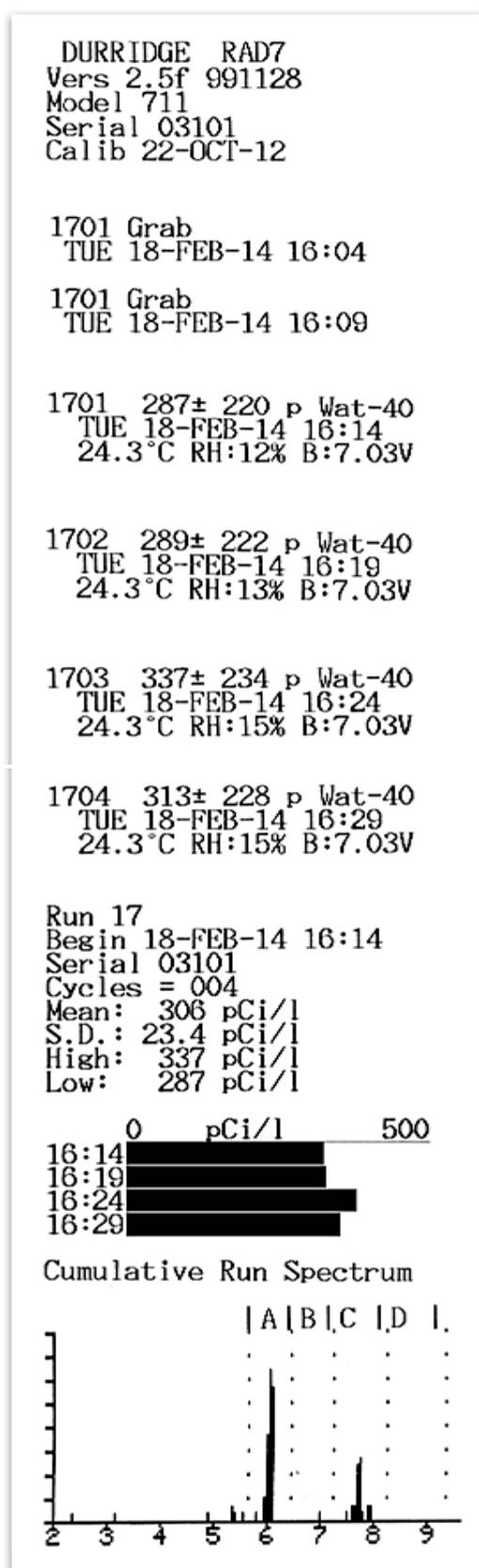
Slika 3.4 Radon u ravnoteži



Slika 3.5 Novi radon



Slika 3.6 Stari radon



Slika 3.7 Izveštaj odštampan sa printerom koji dolazi uz uređaj

Kod ovakvih uređaja korisnik može, po želji da odabere način rada instrumenta, dužinu trajanja merenja, broj ciklusa, izgled izveštaja, režim rada pumpe. Svi podaci koji su izmereni se čuvaju u internoj memoriji uređaja RAD7 do kraja merenja, tada odlučujemo hoćemo li rezultate prebaciti u računar ili ćemo ih odštampati lokalno na printeru koji dolazi uz uređaj. Na ispisanim izveštaju dobijamo između ostalog i sledeće bitne informacije :

- Srednja koncentracija aktivnosti radona za dati period merenja
- Standardnu devijaciju srednje koncentracije
- Najveća izmerena vrednost
- Najmanja izmerena vrednost
- Histogram srednjih koncentracija po zadatim ciklusima i
- Kumulativni alfa spektar
- Datum i vreme

Faktori koji utiču na preciznost i tačnost dobijenih rezultata pomoću RAD7 detektora su: tehnika uzorkovanja, koncentracija i zapremina uzorka, vreme merenja, temperatura, relativna vlažnost i nivo pozadinskog zračenja (RAD7 RAD H₂O, 2012). S obzirom da je nepravilno uzorkovanje najčešći i najbitniji uzrok dobijenih nerealnih rezultata, treba ga vršiti prema preporukama proizvođača (RAD7 RAD H₂O, 2012) na sledeći način: staklena boca postavi se ispod mlaza vode i kada se napuni, pusti se da se preliva kako voda u boci ne bi došla u kontakt s vazduhom. Bocu treba pod mlazom i zatvoriti tako da u boci ne ostane vazduh. Koriste se boce zapremine

250 ml za one uzorke u kojima se ne očekuje koncentracija aktivnosti veća od 100 Bq l^{-1} (efikasnost ekstrakcije je 94%), u suprotnom treba uzorkovati u zapremini boce od 40 ml (efikasnost ekstrakcije je 99%). Kod voda iz slavine, uzorkovanje treba započeti 10 min nakon otvaranja slavine, kako bi se sakupila sveža voda.

Relativna vlažnost najviše utiče na mernu nesigurnost dobijenih rezultata, jer redukuje efikasnost sakupljanja izotopa ^{218}Po , potomaka ^{222}Rn , koji nastaju u komori za merenje. Zbog toga, RAD7 detektor treba da se produva tako da tokom 30 min narednog merenja relativna vlažnost ne prelazi 10%.

Na pozadinske efekte u detektoru RAD H₂O najviše utiču odbroji radonovih potomaka i tragovi radona zadržani od prethodnih merenja, naročito ukoliko je prethodno bio meren uzorak sa visokom aktivnošću radona. *Background* uzorak je destilovana voda ostavljena da stoji zatvorena više od 4 nedelje i koji je potom meren nekoliko puta u istom protokolu (održavajući relativnu vlažnost < 8%). *Background* iznosi $0,1 \text{ min}^{-1}$, minimalna detektibilna aktivnost za 20 minuta merenja je $0,37 \text{ Bq l}^{-1}$, koju je moguće postići jedino ukoliko se sav zaostali radon eliminiše iz sistema (odnosi se na merenje 250 ml uzorka vode) (RAD7 RAD H₂O, 2012).

3.2 Quantulus 1220TM

Quantulus 1220TM je niskofonski detektor proizvođača Perkin Elmer, Finska. Uređaj karakteriše vema visoka stabilnost. Takođe poseduje veoma dobru aktivnu i pasivnu zaštitu, zbog toga ima veoma nizak *background*. U Quantulus-u se nalaze dva dualno programibilna višekanalna analizatora (*Multi Channel Analyzer*), od kojih jedan služi kao aktivna zaštita, a drugi beleži spektre. Parametar koji se ne sme zaboraviti pri opisivanju ovog spektrometra je PSA (Pulse Shape Analyzer). Softver ovog spektrometra radi na platformi Windows 95, NT4 ili Windows XP, a korisnički interfejs je program WinQ. Informacije sačuvane na hard disku računara kasnije se obrađuju oflajn pomoću programa Easy View-softvera za analizu spektara.

3.2.1 Metoda merenja

Metoda je propisana od strane američke Agencije za zaštitu životne sredine (Environmental Protection Agency - EPA) za određivanje koncentracije aktivnosti ^{222}Rn na tečnom scintilacionom spektrometru (LSC). Metoda je dizajnirana za analizu radona iz podzemnih i površinskih izvora vode.

O samoj metodi i spektrometru Quantulus-u biće više rečeno u sklopu eksperimentalnog dela.

4 Alfa spektrometrija tečnim scintilacionim metodom

4.1 Scintilacioni detektori

Scintilacioni detektori danas spadaju u najčešće korišćene detektore u svijetu nuklearne fizike i fizike elemetarnih čestica. Njihov rad zasniva se na pojavi luminiscencije, tj. emitovanja vidljive svetlosti (scintilacije) ukoliko atomi radnog tela bivaju pobuđeni ili jonizovani. Najstariji primer upotrebe ovih detektora je eksperiment koji su izveli Gajger i Marsden. Rasejane alfa čestice uočavane su preko scintilacionog svetla koje su proizvodile na ZnS ekrantu. Na ovaj način ustanovljena je prostorna distribucija rasejanih alfa čestica na tankoj foliji zlata.

Osnovni problem koji je stajao na putu detekcije zračenja koja bi se bazirala na procesu luminiscencije je činjenica da materijali uglavnom nisu prozirni za sopstvenu svetlost. Problem se ogleda u tome što talasna dužina svetlosti koju telo apsorbuje jednaka je talasnoj dužini svetlosti koju ono emituje. Pronalaskom materijala koji su prozirni za sopstvenu svetlost dobija se mogućnost da se naprave scintilacioni detektori kod kojih bi cela zapremina mogla biti upotrebljiva za registraciju ionizujućeg zračenja, a ne samo njihova površina.

Važna osobina scintilatora je transformacija izgubljene energije ionizujućeg zračenja u svetlost. Ovo svojstvo scintilatora naziva se konverzija ili scintilaciona efikasnost S , a definiše se kao odnos između izgubljene energije čestice po jedinici puta na izračenu svetlost tj. fluorescenciju $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{sv}$ i odgovarajuće izgubljene energije na ionizaciju $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{ion}$:

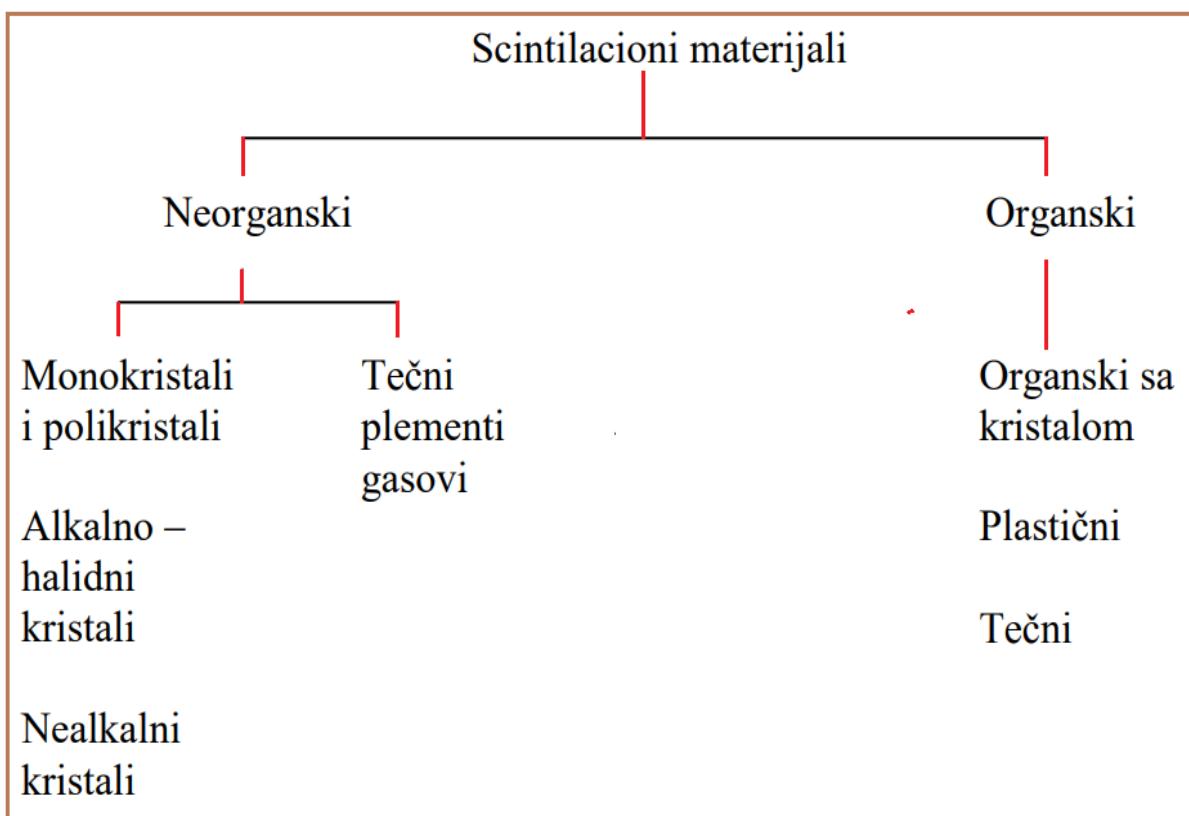
$$S = \frac{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{sv}}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{ion}} \quad 4.1$$

Dobar scintilator mora konvertovati što je veći deo energije upadne radijacije u promptnu fluorescenciju sa što manjim udelom odložene fluorescencije i fosforescencije. Scintilaciona efikasnost - deo energije ionizujućeg zračenja koji se konvertovao u vidljivu svetlost (fluorescenciju), zavisiće od vrste i energije ionizujućeg zračenja. Konkurentni procesi

scintilacijama su relaksacije neradijativnim putem, kojima doprinose nečistoće u scintilatorima i pretvaranje energije pobude u toplotu.

4.2 Scintilacioni materijali

Scintilatore možemo podeliti na neorganske, organske, gasovite i staklene, slika 4.1, zavisno od materijala koji se koristi kao aktivna zapremina, tako da razlikujemo scintilatore sa neorganskim kristalima i organskim materijalima. Mehanizam scintilacije je drugačiji za ove vrste.



Slika 4.1 Scintilacioni materijali

4.2.1 Organski scintilatori

Naftalin, antracen i stilben su materijali koji imaju svojstvo prozirnosti za sopstvenu svetlost i nazivaju se organski scintilatori. Ovi materijali pojavljuju se u kristalnoj formi. Postoje i tečne supstance koje se mogu upotrebiti kao scintilatori, najpoznatije od njih su ksilen i touljen. Kristalni i tečni scintilatori spadaju u ugljovodonična jedinjenja. Elektronsko energetska stanja molekula ovih jedinjenja poseduju veliki broj vibracionih i rotacionih stanja.

Zbog toga se jedan deo energije pobude molekula potroši na prelaze između vibracionih nivoa pobuđenog elektronskog stanja. Energija fotona koji se emituje prilikom prelaska molekula na osnovno elektronsko energetsko stanje, može u tom slučaju da bude manja od energije kojom je molekul pobuđen. Upravo to omogućava da opseg talasnih dužina svetlosti koja se emituje bude pomeren u odnosu na oseg talasnih dužina apsorbovane svetlosti. Svetlost emitovana nakon što jonizujuće zračenje pobudi molekule scintilatora, uspeće da izbegne apsorpciju i izade iznoseći informaciju o interakciju koja se odigrala. Emitovana svetlost ima veću talasnu dužinu od svetlosti koja bi se apsorbovala u određenom organskom materijalu (Krmar, 2013).

4.2.2 Čisti organski scintilatori

U čiste organske kristale spadaju samo antracen i stiliben. Nije potrebno prisustvo molekula aktivatora (nečistoća) da bi se luminescencija povećala. Antracen ima najveću efikasnost konverzije (najveći svetlosni prinos po jedinici depozitovane energije) od svih organskih scintilatora od oko 4,2 %, dok za trans-stilben iznosi oko 2,8 %. Utvrđeno je da scintilaciona efikasnost zavisi od orientacije ionizujuće čestice prema osi kristala. Pogodni su za detekciju nanelektrisanih čestica i brzih neutrona preko uzmaknutog protona. Osetljivi su i na γ -zrake, ali im je energetska rezolucija loša.

4.2.3 Tečni organski scintilatori

Rastvaranjem primarnih organskih scintilatora u odgovarajućim rastvaračima dobijaju se tečni organski scintilatori. Potrebno je imati efikasan energetski transfer od molekula rastvarača do rastvorenog scintilatora (analogno aktivatorima u neorganskim scintilatorima). U većini slučajeva, potrebno je držati ih u zatvorenim bocama jer prisustvo rastvorenog kiseonika u ovim scintilatorima deluje kao prigušivač (quencher), i znatno može redukovati efikasnost fluorescencije. S obzirom da nemaju čvrstu rešetku, otporniji su na intenzivnu radijaciju (i do 10^5 Gy) od čvrstih i plastičnih scintilatora. Često se koriste u eksperimentima u kojima su potrebni detektori velikih zapremina. Ukoliko se radioizotopi rastvore u ovim scintilatorima, emitovane čestice koje prolaze kroz rastvor mogu biti detektovane i sa efikasnošću do skoro 100 %, jer je obezbeđena 4π geometrija. Ovi scintilatori se koriste u merenjima aktivnosti niskoenergetskih β -emitera poput ^{14}C i ^{3}H , zatim u detekciji kosmičkih zraka, ili snimanju neutronskog energetskog spektra u MeV opsegu

4.2.4 Plastični organski scintilatori

Plastični organski scintilatori su čvrsti rastvori organskih scintilatora u organskim tečnostima (polimerizovani), gustine 10^3 kg m^{-3} , imaju slična svojstva kao i tečni organski scintilatori, uz pogodnost da ih nije potrebno stavlјati u merne viale, i da ih je moguće praviti u raznim oblicima i geometrijama po potrebi eksperimenata, npr. izvlačiti ih u tankim folijama, vlaknima itd. Pokazuju inertnost prema vodi, vazduhu, mnogim hemikalijama i stoga se mogu dovoditi u direktni kontakt sa radioaktivnim uzorkom. Najčešće korišćeni rastvarači su polisteren i poliviniltoluen, u kojima su od rastvorenih scintilatora najčešći p-terfenil i POPOP. Koriste se za detekciju γ -zraka, β - i α -čestica i brzih neutrona. Svetlosni prinos plastičnih scintilatora je manji nego kod antracena ($\sim 3\%$), talasne dužine koje odgovaraju maksimalnom emitovanom intenzitetu su u intervalu 350 - 450 nm. Tanki filmovi od plastičnih scintilatora (debljine do svega $20 \mu\text{g cm}^{-2}$, tj. do $10 \mu\text{m}$) pokazali su se korisnim kod merenja vremena preleta (mogu se dobiti podaci o brzini, energiji čestica itd). Pošto su tanki čak i u poređenju sa dometom teških jona, ovi filmovi služe kao transmisioni detektori, tj. mere samo frakciju izgubljene energije čestice tokom njenog prolaska kroz detektor. Svetlosni prinos po jedinici energetskih gubitaka povećava se sa smanjenjem Z , pa su filmovi našli primenu kao transmisioni detektori protona i α -čestica.

4.2.5 Neorganski scintilatori

Neorganski scintilatori su u obliku monokristala. Najzastupljeniji od njih je NaI, ali se koriste i LiI, CsI, CsF i KI. Da bi bili propustljivi za svetlost koju emituju dodaju im se primese, takozvani aktivatori. Aktivatori stvaraju luminiscentne centre. Zračenje koje prolazi kroz kristal stvara elektrone i šupljine koji se pomeraju duž kristalne rešetke. Šupljine mogu biti popunjene elektronima iz luminiscentnih centara. Elektron je na taj način pobuđen i emituje svetlost prilikom prelaska na osnovno stanje. Energija pobude kristala je predata luminiscentnom centru, a svetlost koju on emituje ne biva apsorbovana.

Opšte karakteristike monokristala scintilatora su velika gustina i visok svetlosni prinos, koji garantuju visoku detekcionu efikasnost (veću nego kod Gajger-Milerovih brojača, s obzirom na veću aktivnu masu scintilacionog detektora), uz linearan odziv na elektrone i γ -zrake u visokom opsegu energija. Neorganski scintilatori u čvrstom stanju aktuelni su u tehnikama Scintillation Proximity Assay (SPA), merenjima reakcija vezivanja, korisnim u medicini, biohemiji, molekularnoj biologiji.

4.2.6 Gasoviti scintilatori

Gasoviti scintilatori su smeše plemenitih gasova, kod kojih atomski prelazi rezultuju scintilacijama. Pošto emituju svetlost u UV oblasti, dodaju im se gasovi (npr. azot) koji pomeraju emisioni spektar. Imaju veoma kratko vreme raspada, veoma malu efikasnost za γ -detekciju, pa se koriste za detekciju teških čestica, α -čestica, fisionih fragmenata i teških jona. Svetlosni impulsi po MeV-u depozitovane energije u gasu slabo zavise od nanelektrisanja i mase čestica detektovanog zračenja.

4.2.7 Stakleni scintilatori

U Staklene scintilatore se ubrajaju litijum ili borosilikat sa primesama cerijuma. Najčešće se koriste za neutronsku detekciju, iako su osetljivi i na beta i gama zračenje. Boronski scintilatori imaju deset puta niže izlazne signale od litijumskih, pa se retko koriste. Značajni su zbog otpornosti na sve organske i neorganske reagense, osim fluorovodonične kiseline. Imaju visoku tačku topljenja i izuzetno su otporni, što ih čini pogodnim u ekstremnim uslovima. Prema brzini reagovanja su između plastičnih i neorganskih kristala, reda nekoliko desetina nanosekundi. Izlazni signal je nizak i ne prelazi 25-30% vrednosti koja se dobija sa antracenom. Za detekciju niskoenergetskih neutrona, moguće je povećati osetljivost obogaćenjem litijuma komponentom Li-6. Razdvajanje neutronskih događaja od gama zračenja postiže se diskriminatorom visine impulsa (Leo, 1994).

4.3 Osobine scintilatora

Glavna razlika između organskih i neorganskih je u svetlosnom odzivu i brzini. Neorganski imaju veliki svetlosni odziv, ali su dosta spori, a organski imaju mali svetlosni odziv, ali veću brzinu. Za idealni scintilator i malu jonizacionu gustinu važi da je luminescencija direktno proporcionalna energiji izgubljenoj u scintilatoru (Knoll, 1989).

Idealan scintilacioni materijal trebalo bi da poseduje sledeća svojstva:

1. Scintilator mora biti pogodan za interakciju sa nuklearnim zračenjem i posedovati mogućnost konverzije kinetičke energije nanelektrisanih čestica u detektibilnu svetlost sa visokom efikasnošću konverzije (fluorescentnom kvantnom efikasnošću) i visokim prinosom fotona.

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

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

. 4. Vreme raspada indukovane luminescencije trebalo bi biti kratko da bi se mogli generisati brzi impulsi (brz odziv).

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

6. Indeks refrakcije materijala bi trebalo da bude približno kao kod stakla ($\sim 1,5$) da bi se obezbedilo efikasno prenošenje scintilacija u fotomultiplikatorima. Takođe, scintilacioni spektar mora približno odgovarati maksimumu spektralne osetljivosti fotokatode PMT-a kako bi transformacija svetlosti u električne impulse bila bolja.

7. Scintilator mora imati dovoljnu rastvorljivost.

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

Na žalost, materijal koji poseduje istovremeno sva navedena svojstva ne postoje i odabir scintilatora predstavlja uvek kompromis među ovim faktorima. Najviše se koriste neorganski kristali alkalnih halogenida (pogotovo NaI, koji ima najveću efikasnost svetlosne konverzije, 28 %) – oni imaju najveći svetlosni prinos, dobru linearnost odziva, ali često spor odziv, i organski tečni ili plastični scintilatori – koji imaju brži ali slabiji prinos svetlosti. Neorganski scintilatori su zbog velikog efektivnog atomskog broja Z i velike gustine u kombinaciji sa velikom zapreminom kristala pogodni u γ -spektroskopiji, a organski su zbog velikog sadržaja vodonikovih atoma najzastupljeniji u β -spektroskopiji i detekciji brzih neutrona. Danas se za spektroskopiju α -zraka, zbog bolje energetske rezolucije, više koriste poluprovodnički nego scintilacioni detektori. Pri nekim eksperimentima, međutim, scintilacioni detektori su nezamenjivi, a tada se koriste CsI(Tl) i NaI(Tl). U slučaju β -čestica uglavnom se koriste plastici i organski scintilatori. Ovi scintilatori imaju lošu energetsku rezoluciju i pretežno se, zbog toga, koriste kao brojači. Zbog kratkog vremena trajanja svetlosnog impulsa (10^{-7} - 10^{-9} s) nakon detekcije čestice, scintilacioni detektori imaju mnogo veću brzinu brojanja u odnosu na gasne. Zbog veće gustine materijala kroz koji se zračenje prostire, efikasnost ovih detektora je par redova veličine veća od gasnih detektora. Scintilacioni detektori imaju široku primenu u detekciji i spektroskopiji γ -zračenja, najpogodniji scintilator je NaI(Tl).

Tečni i plastični scintilatori imaju veoma dobru vremensku rezoluciju – zbog kratkog vremena luminescencije, moguće je detektovati veoma velik broj brzih sukcesivnih događaja. Zbog manjeg efektivnog rednog broja (u odnosu na neorganske scintilatore) u slučaju detekcije fotona, veći broj interakcija se odvija putem Komptonovog efekta (znajući da je jedino fotoelektrični efekat u kom foton kompletну energiju ostavlja u aktivnoj zapremini detektora merodavan za merenje energije fotona, a verovatnoća interakcije fotoefekta raste sa Z^5), pa se organski scintilatori ređe koriste za γ -spektroskopiju. Veoma su pogodni za β -spektroskopiju.

4.4 Scintilacioni procesi u koktelima

Scintilacioni koktel i radioaktivni uzorak mešaju se u zapremini staklenih boca (viala). Radioaktivni uzorak je rastvoren u organskom rastvaraču ili u vodi dok koktel u sebi sadrži rastvarač (S) i scintilator koji emituje fluoroscentnu svetlost (F). Jonizujuće zračenje pri interakciji sa uzorkom ekscituje molekule, stvara jonske parove, slobodne radikale, sekundarne čestice i povećava energiju molekula. Od tipa procesa koji se odvijaju u interakcijama nanelektrisanih čestica sa materijom zavisiće koncentracija tih pobuđenih i jonizovanih molekula. S obzirom da su molekuli rastvarača zastupljeni u većoj koncentraciji od rastvorenih molekula F u koktelu, jonizujuće zračenje će u uzastopnim interakcijama sa scintilitorskim materijalom uglavnom da ionizuje ili eksituje aromatične molekule rastvarača ($S \rightarrow S^+ + e^-$ ili $S \rightarrow S^*$). Ionizovani molekuli rastvarača zarobe slobodni elektron i konvertuju se do neutralnih (eksitovanih) molekula ($S^+ + e^- \rightarrow S^*$), koji vrše transfer dela energije eksitacije drugim molekulima rastvarača ili molekulima scintilatora (F) neradijativnim procesima ($S_1^* + S_2 \rightarrow S_1 + S_2^*$ ili $S_2^* + F \rightarrow S_2 + F^*$). Eksitovani molekuli fluora se deeksituju u emisijama UV ili vidljive (plave) svetlosti talasnih dužina 375 - 430 nm ($F^* \rightarrow F + h\nu$), za koje su scintilacioni koktel i zid viala transparentni. Fotoni koji su nastali padaju na katodu, izbijaju elektrone koji potom stižu na fotomultiplikatorsku cev. Dužina svetlosnog signala traje 5 ns. Po svakom keV deponovane energije od strane β^- čestice u koktelu generiše se oko 12,5 fotona. Intenzitet svetlosti je proporcionalan izlaznom signalu iz PMT-a.

Molekul rastvorenog scintilatora iz koktela emituje svetlost čiji je intenzitet proporcionalan energiji radioaktivnog raspada, a broj impulsa po jedinici vremena je proporcionalan broju raspada po jedinici vremena (radioaktivnosti uzorka) (Stojković, 2015).



Slika 4.2 Šema osnovnog procesa u tečnom scintilatoru (L'Annunziata, 2012)

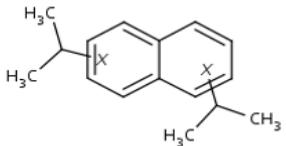
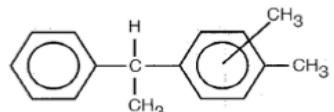
Zračenje koje emituje uzorak predaje svoju energiju molekulima rastvarača, a oni potom svoju energiju predaju fluoru (LSC koktel je organski rastvarač koji sadrži male količine aditiva-fluora, koji poboljšavaju same performanse detekcije), te pobuđeni molekuli fluora prelaze u osnovno stanje i emituju fotone.

4.5 Rastvarači

Za LSC koktele koriste se aromatični rastvarači jer imaju veliku gustinu elektrona: benzen, toluen, ksilen, pseudokumen (1,2,4-trimetilbenzen) – nabrojani su prema rastućoj efikasnosti detekcije. Dati rastvarači imaju niz nedostataka: toksičnost, zapaljivost, visok pritisak pare, jako su neprijatnog mirisa itd. Danas je u upotrebi nova generacija bezbednijih rastvarača: di-izopropilnaftalen (DIN), fenilksililetan (PXE), dodecilbenzen (LAB). Udeo rastvarača u LSC koktelu može iznositi 60 – 99 % ukupne zapremine koktela. Komercijalni LSC kokteli uglavnom su na bazi “bezbednijih” rastvarača (na bazi DIN-a je npr. UltimaGold, koji ima visoku efikasnost detekcije ${}^3\text{H}$, i veću otpornost na obojeno i hemijsko prigušenje). Rastvarače iz obe grupe možemo predstaviti prema rastućoj efikasnosti detekcije (Stojković, 2015):

benzen→LAB→toluen→ksilen→pseudokumen→PXE→DIN

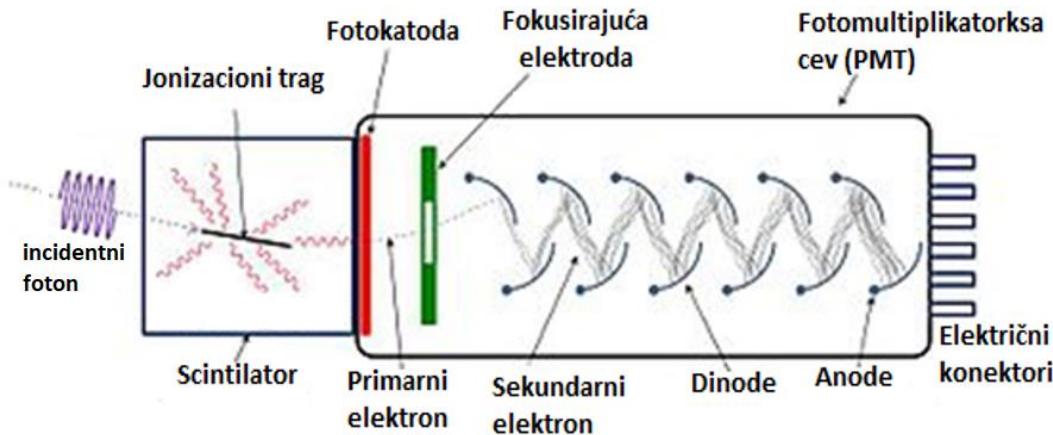
Tabela 4.1 Ekološki bezbedni rastvarači

Rastvarač	Struktura	Relativni prinos scintilacija*	$\lambda_{\text{apsorpcije}}$ [nm]	λ_{emisije} [nm]
di-izopropilnaftalen (DIN) C₁₆H₂₀		112	>290	-
fenilksililetan (PXE) C₁₆H₁₈		110	267	290
dodecilbenzen (LAB) C₁₂H₂₅C₆H₅		-	-	-

4.6 Fotomultiplikatori

U svrhu pravljenja detektora od nekog scintilacionog materijala, neophodno je svetlosne impulse pojačati i transformisati u signale koji se lako mogu obrađivati. To se može uraditi pomoću fotomultiplikatora. Elektronska cev cilindričnog oblika koja izgrađuje sam fotomultiplikator na jednom kraju ima prozor transparentan za svetlost koju emituje scintilator. Ispod prozora se nalazi fotokatoda načinjena od metala koji ima mali izlazni rad za emisiju elektrona. Svetlost koju scintilator emituje pada na fotokatodu i iz nje izbjija elektrone. Elektroni bivaju ubrzani putem električnog polja i usmereni ka prvoj od 10 do 20 dinoda koje su instalirane u fotomultiplikatoru. Svaka od dinoda s nalazi na višem potencijalu od prethodne, što se postiže razdelnikom napona – nizom vezanih otpornika. Elektroni u procesu ubrzavanja unutar fotomultiplikatora izbijaju sve više i više lektrona padajući na sledeću dinodu. Elektroni se ubrzavaju pomoću rastućeg električnog polja. Proces se nastavlja do poslednje dinode pri čemu se ukupan broj elektrona umnožava za nekoliko redova veličine. Iza poslednje dinode se nalazi anoda koja ima najviši potencijal i konačno prikuplja sve ektrone (Krmar, 2013).

Veza između scintilatora i fotomultiplikatora treba da bude izvedena na taj način da spoljašnja svetlost nikako ne može da prodre do fotokatode, tako da signali koji se dobijaju na izlazu fotomultiplikatora potiču samo od svetlosti stvorene interakcijom zračenja sa kristalom.



Slika 4.3 Šematski prikaz scintilacionog detektora sa fotomultiplikatorskom cevi (PMT)

Količina emitovane svetlosti je proporcionalna energiji koju je čistica zračenja ostavila u scintilatoru, jasno je da postoji direktna proporcionalnost između visine naponskog signala i energije registrovane u scintilatoru. To znači da se scintilacionim detektorima mogu meriti energije detektovanih čestica, pod uslovom da one svoju kompletну energiju ostvare unutar scintilatora. Energiju fotona moguće je odrediti samo u slučaju kada on doživi fotoelektrični efekat u aktivnoj zapremini detektora. To znači da je foton svoju kompletну energiju predao scintilatoru i da će visina naponskog signala na izlazu fotomultiplikatora odgovarati energiji fotona (Krmr, 2013).

4.6.1 Primarni i sekundarni scintilatori

Primarni scintilatori vrše inicijalnu izmenu energije, ali se λ emitovane svetlosti ne poklapa sa optimalnom λ detekcije u fotomultiplikatorskoj cevi, upravo zbog toga je potreban sekundarni scintilator koji pomera emitovanu λ na onu koja odgovara cevi PMT-a. Od koncentracije scintilatora u najvećoj meri zavisi efikasnost transfera energije od rastvarača do scintilatora. Svetlosni prinos je rastuća funkcija koncentracije scintilatora sve do neke maksimalne vrednosti svetlosnog prinosa kada sa daljim povećavanjem koncentracije nastupa saturacija. Primarni molekuli fluora su obično substituisani fluorescentni poliarili. Njihov udeo se kreće od 0,3 – 1 % zapreme koktela. Najčešće primenjivani primarni scintilatori su: p-

terfenil, PBD (ili 2-fenil-5-(4difenilil)-1,3,4-oksadijazol), butil-PBD, naftalen, 9,10-difenilantracen i dr. Najpopularniji primarni scintilator i najčešći u upotrebi je PPO, radi svojih ukupnih performansi, čistoće, cene i dostupnosti na tržištu. Butil-PBD je nešto ređe korišćen jer poprima žutu boju u kontaktu sa alkalnim supstancama (npr. rastvaračima tkiva). Najčešće primenjivani sekundarni scintilatori su: POPOP (1,4-bis-2-(5-fenilosazolil)benzene), M₂-POPOP, bis-MSB (p-bis-(o-metilstiril)benzene, α-NPO (2-(1-naptil)-5-fenilosazol) i dr. Najvažniji sekundarni scintilator je bis-MSB, a zatim dimetil POPOP. Koncentracije sekundarnih scintilatora obično su oko 1% koncentracije primarnog scintilatora.

4.7 Procesi koji ometaju LSC detekciju

4.7.1 Pozadinsko zračenje

Pozadinsko zračenje predstavlja odbroje (u opsegu od 0 - 5 keV, za instrumente kod kojih su spektri kalibrirani na energetski raspon 0 - 2000 keV) u detektoru koji potiču od spoljašnjih izvora-kosmičkog zračenja i zračenja iz okruženja, kao i od samog instrumenta i fotomultiplikatorskih cevi. Tokom svakog merenja treba uzeti u obzir da postoji *background* i od izmerenog odbroja oduzeti odbroj *background-a*. Merenjem *blank* uzorka dobija se odbroj *background-a*. *Blank* predstavlja vial sa scintilacionim koktelom koji ne sadrži radionuklid koji se ispituje. Upotrebom koincidentnih kola, pasivne zaštite (Pb, Cu), aktivne zaštite, poređenjem amplituda impulsa i kontrolom temperature može se umanjiti ili eliminisati pozadinsko zračenje.

4.7.2 Prigušenje u scintilacionim brojačima

Poznato je da u LSC uzorcima nema samoapsorpcije, pa na prigušenje u scintilacionim brojačima najviše utiče apsorpcija fotona (emitovanih iz scintilatora) od strane rastvorenih minerala iz prirodnih voda, što redukuje efikasnost detekcije (Pujol and Sanchez-Cabeza, 2000). Prigušenje je gubitak energije u toku njenog prenosa, dakle smanjuje se intenzitet fotona (scintilacije) i efikasnost detekcije radionuklida u scintilacionom koktelu. Prigušenje može biti ionizaciono, hemijsko i obojeno. Ionizaciono prigušenje odnosi se na redukciju broja gusto pobuđenih molekula scintilacionog koktela usled njihove interakcije, pa je ono posledica ionizacije generisane od strane nuklearnog zračenja uz redukciju intenziteta fotona. U aromatičnom rastvoru u kom se nalaze radioaktivni uzorak i scintilator može doći do hemijskih ili obojenih prigušenja. Data prigušenja redukuju efikasnost energetskog transfera ili čak uzrokuju apsorpciju fotona. Kod hemijskog prigušenja se u toku transfera od rastvarača do rastvorenog scintilatora dešava delimična apsorpcija energije nuklearnog raspada od strane molekula scintilatora pre konverzije u fotone – jer elektronegativni atomi vezuju π elektrone iz aromatičnih rastvora i time redukuju dostupne π elektrone za efikasan transfer energije. Obojeno prigušenje je atenuacija fotona u procesima apsorpcije ili rasejanja fotona pre njihove detekcije, što daje redukovani izlazni svetlosni signal. Hemijsko prigušenje je prisutno u određenoj meri u svim LSC uzorcima, dok se obojeno prigušenje javlja samo ukoliko se zapaža da uzorak nije transparentan. Nivo prigušenja je neophodno izmeriti zbog određivanja

apsolutne aktivnosti uzorka i ako je neophodno vrši se korekcija izmerene efikasnosti. Nivo prigušenja je moguće precizno izmeriti spektralnom analizom visoke rezolucije.

4.7.2.1 Metode korekcija prigušenja u LSC merenjima

Postoje metode korekcija prigušenja u LSC merenjima i dele se na:

1. Metod internog standarda (IS)

Postupak sa internim standardom se često primenjuje za ekološke uzorke sa niskom aktivnošću, za koje je vreme merenja mnogo veće od vremena merenja aktivnosti tog uzorka sa internim standardom. Opisani metod je najtačniji od svih metoda korekcija prigušenja. Njegove mane su: dugo potrebno vreme merenja i komplikovana procedura koju je potrebno sprovesti za svaki uzorak posebno.

2. Metode na osnovu karakteristika spektra uzorka

Metode na osnovu karakteristika spektra uzorka podrazumevaju korekciju prigušenja na osnovu nekih karakteristika spektra uzorka koje mogu poslužiti kao mera prigušenja u uzorku. U ove metode spadaju: SCR (Sample Channels Ratio), Kombinovani metod (IS-SCR) itd.

3. Metod eksternog standarda

Eksterni izvor γ -zračenja u interakcijama sa smešom scintilator+uzorak generiše Komptonov spektar u scintilacionom koktelu, što olakšava merenje nivoa prigušenja u uzorku, jer spektar uzorka i spektar Komptonovih elektrona eksternog standarda treba da pokažu isti nivo prigušenja. Najstarija tehnika primenjivana za sve eksterne standarde je External Standard Channels Ratio (ESCR), slična SCR tehniči. Osnovna je razlika što se kod ESCR određuje nivo prigušenja korišćenjem odnosa kanala dobijenog na osnovu Komptonovog spektra interakcija eksternog standarda sa scintilacionim koktelom u uzorku, a ne odnosa kanala dobijenog iz spektra uzorka kao kod SCR. Uopšte gledano, prednost tehnika eksternih u odnosu na interne standarde su brzina određivanja nivoa prigušenja i što metode ne menjaju strukturu uzorka. SQP(E) (Spectral Quench Parameter of the External Standard) parametar meri se pomoću ^{226}Ra ili ^{152}Eu kao eksternog izvora (u LKB i Wallac instrumentima). SQP(E) je jednostavno odnos centra mase izmerenog spektra i neprikušenog teorijskog spektra. MCA sa 1024 logaritamska kanala određuju poziciju 99,5% kraja spektra eksternog izvora u cilju definisanja SQP(E). Izvor γ -zračenja postavlja se ispod uzorka pomešanog sa scintilatorskim koktelom, pri čemu SQP(E)

predstavlja najviši kanal (kraj spektra) koji obuhvata 99,5% svih odbroja koji čine spektar eksternog izvora. Odbroji standarda i SQP(E) svakog standarda se mere tehnikama LSA, i dobija se korekciona kriva prigušenja zavisnosti efikasnosti detekcije od SQP(E) parametra. Ova kriva omogućuje da se uzorak nepoznate aktivnosti analizira pomoću LSA, kojom prilikom instrument meri i SQP(E), na osnovu čega se može izvesti sa kojom efikasnošću je uzorak meren

4. Direktni DPM metod

Ovi metodi podrazumevaju LSA merenja absolutne aktivnosti radionuklida (DPM), posebno β -emitera, pri raznim nivoima prigušenja bez upotrebe kalibracionih krivih prigušenja. U ovu metodu spadaju: CICM (Conventional Integral Counting Method) i MICM (Modified Integral Counting Method).

4.8 Luminescencija

Pod luminescencijom u tečnim scintilacionim koktelima podrazumeva se emisiju fotona koja prati ekcitaciju molekula nakon apsorpcije energije koja ne potiče od nuklearnog zračenja. Postoji nekoliko vrsta luminescencija: bioluminescencija, fotoluminescencija, hemiluminescencija. Bioluminescencija predstavlja emisiju fotona kao posledicu biohemijskih reakcija, dok hemiluminescencija predstavlja emisiju fotona kao rezultat hemijskih reakcija. U toku hemiluminescentnih reakcija, iz scintilacionog koktela se emituju pojedinačni fotoni. Fotoluminescencija se javlja kao posledica izlaganja smeše uzorka i scintilacionog koktela UV zračenju, a predstavlja emisiju usamljenog fotona i traje nekoliko minuta. Noviji tečni scintilacioni brojači mogu da odrede stepen luminescencije u uzorku u procentima zajedno sa njegovim CPM i DPM vrednostima (Stojković, 2015):

$$\text{luminescencija [%]} = \frac{\text{mogući koincidentni događaji}}{\text{realni koincidentni događaji}} \cdot 100 \quad 4.2$$

Ukoliko se luminescencija detektuje postoji nekoliko metoda za njenu eliminaciju: hemijski metod (neutralizacija jako alkalnih rastvora neoksidujućom (npr. sirčetnom) kiselinom), - kontrola temperature, podešavanje regiona detektovanih odbroja - region odbroja

se podesi iznad ~ 10 keV, što osigurava da nijedan registrovan impuls neće poticati od luminescencije.

4.9 Efekat statičkog elektriciteta

Prilikom pripreme uzoraka u vialima može doći do pražnjenja statičkog elektriciteta. Pražnjenje statičkog elektriciteta je slučajan događaj i često nastaje u uslovima niske vlažnosti u laboratorijama koje se zagrevaju suvim vazduhom. Prilikom pražnjenja generišu se fotoni koji su takođe izvor smetnji tokom LSC merenja. Statički elektricitet nastaje trenjem ili pritiskom između dva materijala. Intenzitet statičkog elektriciteta meri se kao pozitivan ili negativan napon na površini materijala i može da iznosi nekoliko desetina hiljada volti. Statički elektricitet se može zadržati na površini viala jako dug vremenski period. Elektrostatičko pražnjenja prilikom merenja scintilacione boćice izgleda kao električna svetlosna oluja u ili na površini viala, zbog čega se detektuju nasumični impulsi. Postoje metode koje mogu u potpunosti eliminisati ovaj efekat.

4.10 Efekat zidova

Poseban problem predstavlja mogućnost prodiranja organskog scintilatora u zid plastične boce. Ova pojava je posebno izražena ako se primenjuje metod korekcije prigušenja na osnovu eksternog standarda, jer plastični viali u čije zidove je prodro rastvarač mogu scintilirati. Upravo te scintilacije bi izazvale distorziju visina impulsa u spektru eksternog standarda. Ovaj efekat se javlja prilikom merenja uzoraka u plastičnim vialima sa klasičnim koktelima ali problem je prevaziđen upotrebom ekološki bezbednih koktela u kombinaciji sa plastičnim ili staklenim vialima. Takođe kao rešenje se nudi upotreba klasičnih koktela u staklenim vialima (Stojković, 2015).

II Eksperimentalni deo rada

5 Quantulus 1220TM

Quantulus 1220TM je tečni scintilacioni brojač koji ima nenadmašan učinak merenja ekstremno niskih koncentracija aktivnosti radionuklida. Ovaj tečni spektrometar proizveden je od strane proizvođača Perkin Elmera, Finska. Izgled spektrometra prikazan je na slici 5.1.



Slika 5.1 Quantulus 1220TM

Uređaj karakteriše vema visoka stabilnost, ako merenje traje veoma dugo. Takođe poseduje veoma dobru aktivnu i pasivnu zaštitu, zbog toga ima veoma nizak *background*. Fotomultiplikatori pokazuju veoma niske inherentne pozadinske efekte i spektralnu stabilnost uz visoku kvantnu efikasnost. Asimetričan pasivni štit koji poseduje spektrometar slabi (atenuira) većinu gama zračenja iz okoline. maksimalna debljina olova je 200 mm na vrhu, 100 mm na bočnim zidovima i 150 mm ispod komore za brojanje. Služi za detekciju i brojanje, alfa i beta zračenja, Čerenkovljevog ekekta, X-zračenja, Augerovih elektrona, luminescencije, i gama zračenja. Maksimalna fizička zapremina uzorka koji treba biti pripremljen jeste 20 ml

U Quantulus-u se nalaze dva dualno programibilna višekanalna analizatora (MultiChannel Analyzer), od kojih jedan služi kao aktivna zaštita, a drugi beleži spektre. Dualni multikanalni analizatori (MCA) osiguravaju skladištenje pune spektralne informacije, čak mogu skladištiti i informacije koje su odbačene ako je to potrebno. Original spektar pored MCA može biti sačuvan i na hard-disku u ASCII formatu, a dostupni su i u sopstvenim

programima korisnika. Multikanalni analizator je zasnovan na 12-bitnom analogno-digitalnom konvertoru i nudi rezoluciju 0,0038 keV u najnižem opsegu (što odgovara tricijumu) (QUANTULUS™ , 2002).

Parametar koji se ne sme zaboraviti pri opisivanju ovog spektrometra je PSA (Pulse Shape Analyzer). PSA obezbeđuje identifikaciju čestica jonizujućeg zračenja, što omogućuje simultano snimanje čistih α - i β -spektara i detekciju veoma malih α -aktivnosti u prisustvu visoke β aktivnosti. PSA je neophodan preduslov za osjetljivost tečnog scintilacionog alfa brojanja. PSA nivo moguće je podesiti tako da "odseče" efikasnost brojača β -impulsa za npr. 5%, što bi redukovalo β -background pogotovo u slučaju upotrebe staklenih bočica, pri čemu bi se i dodatno redukovao već nizak $background$ postignut radom antikoincidentnog zaštitnog detektora. Softver omogućuje podešavanje PSA nivoa na osnovu vrednosti *FOM*. Analogno ovom, α -background redukuje se "odsecanjem" efikasnosti brojača α -impulsa (QUANTULUS™ , 2002).

Quantulus 1220™ softver radi na platformi Windows 95, NT4 ili Windows XP. Korisnički interfejs je program WinQ. Ovaj program nudi veliki broj grupa parametara ili protokola, ograničena je samo veličina hard-diska na računaru. Takođe obezbeđuje direktni prikaz izabranog spektra na ekranu računara. Informacije sačuvane na hard disku računara mogu se kasnije obrađivati oflajn pomoću programa Easy View-softvera za analizu spektara. 1224-534 Easy View prikazuje do 6 spektara istovremeno i omogućava spektralnu aritmetiku, različite vrste kalkulacija i statističkih analiza (QUANTULUS™ , 2002). Prednosti ovakvog načina ispitivanja uzorka su: nepotrebna hemijska separacija, MDA veoma nizak, $background$ redukovani i automatizacija merenja koja omogućuje merenje više uzorka zaredom na osnovu zadatog protokola merenja.

Prednosti Quantulus-a u odnosu na druge detektore su:

- Visoka stabilnost i prilikom dugog vremena merenja;
- Napredno razdvajanje alfa i beta spektara;
- Pasivna atenuacija zračenja iz okoline i aktivna zaštita od komšičkog zračenja i zračenja iz sredine, koja sprečava gubitke u efikasnosti detekcije.

5.1.1 Metoda merenja

Metoda je propisana od strane američke Agencije za zaštitu životne sredine (Environmental Protection Agency - EPA) za određivanje koncentracije aktivnosti ^{222}Rn na tečnom scintilacionom spektrometru (LSC). Metoda je dizajnirana za analizu radona iz podzemnih i površinskih izvora vode. Preporučuje se njeno korišćene samo za uzorke pijaće vode, jer primene ovog analitičkog postupka na drugim uzorcima nisu ispitane. Metoda propisuje i način uzorkovanja vode, a to podrazumeva da se prilikom uzorkovanja vode ona pusti da prelije ambalažu u koju se sipa i brzo zatvori da radon ne bi pobegao. Merenje je potrebno izvršiti u naredna tri dana, zbog perioda poluraspada radona. Uzorkovana voda u laboratorijskim uslovima mora stajati na konstantnoj temperaturri i pritisku, jer ovi parametri utiču na difuziju radona. Uzorkovanje je potrebno vršiti u staklenim flašama sa teflonskim čepom, a prilikom pripreme uzorka to treba vršiti u malim staklenim bočicama, vialima, jer je potvrđeno da staklene boce i teflonski čepovi sprečavaju difuziju radona pa se zbog toga preporučuju za njegovo uzorkovanje i pripremu (913.0, EPA Method, 1991)

Prema EPA Method-u 913.0 postupak je sledeći: 10 ml razređenog standarda je presuto u 20 ml scintilacioni vial u koju se dodaje i 10 ml scintilacionog koktela. *Backgorund* uzorci su pripremljeni sa 10 ml destilovane vode. Standardni i *Backgorund* uzorci su ostavljeni da stoje 30 dana kako bi radon dostigao sekularnu ravnotežu. Radon difunduje iz uzorka u scintilacioni koktel prema kojem ima mnogo veći afinitet nego prema vodi. Standardi se mere 50 minuta na tečnom scintilacionom detektoru Quantulus 1220 (Todorović et al, 2014). Za određivanje sadržaja radona u vodi za piće, 10 ml uzorka vode se pipetira u staklenim scintilacionim vialima u koje se dodaje 10 ml scintilacionog koktela. Uzorci se promućkaju i ostave na tamno mesto najmanje tri sata da bi se ostvarila ravnoteža potomaka radona. Ono što se može videti u radu (Kitto, 1994) je da se kod pripreme dvofaznih uzorka inicijalno mućkanje uzorka odmah nakon mešanja sa koktelom podstiče transfer radona u organsku fazu i dostizanje ravnotežnog stanja u vialu (stanje hemijske i radioaktivne ravnoteže se postiže u roku od 5 h), i da je vreme mućkanja (3-40 s) obrnuto proporcionalno vremenu dostizanja ravnoteže, dok se u uzorcima koji nisu uopšte bili mućkani ravnoteža dostizala nakon 25 h. Svako naredno mućkanje uzorka remeti ravnotežu jer se radon i njegovi potomci vraćaju u vodenu fazu, a ravnoteža se uspostavlja ponovo nakon 2 h. U novijim radovima su utvrdili da mućkanje viala nakon dodavanja koktela uzorku ne ubrzava

difuziju radona u organsku fazu koktela koji se dobro meša sa vodom (Gomez Escobar et al, 1996).

Optimizacija metode prvo je urađena sa scintilacionim koktelom OptiPhase HiSafe 3. Spomenuti koktel spada u monofazne koktele. Ostvarena je odlična alfa i beta separacija i dobro se meša sa vodom i vodenim rastvorima, a viali gdje je pomešan radijumov standard sa OptiPhase HiSafe su transparentni i homogeni. Pored ovog koktela monofazne uzorke daje i scintilacioni koktel Ultima Gold AB ali uzorci su zamućeni. U ovom radu merenja će se vršiti na različitim scintilacionim koktelima među kojima su već spomenuti koktel Ultima Gold AB, a zatim: Mineral Oil Scintillator, Ultima Gold F i Opti Fluor O. Više o samoj metodi i detektoru biće rečeno u eksperimentalnom delu.

5.2 Merenje radona u vodi LSC metodama

Najveća prednost LSC tehnike je što omogućuje analizu velikog broja uzoraka u relativno kratkom vremenu i što tečni scintilacioni brojač registruje ^{222}Rn impulse zahvaljujući PSA diskriminatoru alfa/beta impulsa (Jowzaee, 2013; Mitev et al, 2012). Najniža detektibilna aktivnost postiže se uz upotrebu α/β diskriminadora, $0,04\text{-}0,2 \text{ Bq l}^{-1}$ (L'Annunziata, 2012), bez upotrebe diskriminadora detektibilna aktivnost za merenja od 20 do 60 min je manja od 1 Bq l^{-1} (L'Annunziata, 2012). Međutim LSC metode imaju slabu energetsku rezoluciju (Gomez Escobar et al, 1996). Postoje dve LSC metode za merenje radona u vodi:

5.2.1 Dvofazna metoda

Dvofazni metod podrazumeva kombinaciju scintilacionog kotela koji se ne meša sa vodom, odnosno dobijamo 2 faze. Scintilacioni kokteli koji daju dvofazni uzorak su: Mineral Oil Scintillator (MOS), Opti-Fluor O (OFO) i Ultima Gold F (UGF).

10 ml uzorka vode ubrizga se špricem u 10 ml scintilacionog koktela koji se ne meša sa vodom, tako da se u vialu izdvajaju dve faze. Mučkanje uzorka u trajanju od minimum 1 min pomaže ekstrakciju radona iz vode u organsku fazu, pri čemu radijum ostaje u vodenoj fazi (Jowzaee, 2013).



Slika 5.2 Dvofazni uzorak

5.2.2 Monofazna metoda

U ovoj metodi dolazi do potpunog mešanja scintilacionog koktela i uzorka vode, ne postoji razdvajanje faza. Scintilacioni koktel Ultima Gold AB (UGAB) daje monofazne uzorke. Ovi uzorci su zamućeni za razliku od uzorka pripremljenim sa OPHS3 koktelom koji su bili transparentni i na kojima je urađena prvobitna kalibracija.

U ovoj tehnici, 10 ml uzorka vode se pipetira u viale i meša sa 10 ili 12 ml scintilacionog koktela tako da se dobija homogena smeša (Salonen, 2010)



Slika 5.3 Monfoazni uzorak

Uočene su određene razlike između ove dve metode:

1. U homogenim uzorcima postiže se za nekoliko procenata veća efikasnost detekcije u odnosu na dvofazne uzorke (u kojima se uspostavlja neka distribucija ^{222}Rn u vodenoj i organskoj fazi i u preostalom vazduhu u vialu; koeficijenti podele ^{222}Rn voda:koktel:vazduh = 1:48:4).
2. U homogenim uzorcima je veći i nivo pozadinskog zračenja, i nešto viša granica detekcije (zato što su radijum i svi prisutni radionuklidi zajedno sa radonom u homogenoj smeši vode i scintilacionog koktela) u odnosu na dvofazne uzorke (u njima radijum i ostali radionuklidi ostaju u vodenoj fazi).
3. Homogeni uzorci su stabilni tokom vremena (danim nakon pripreme). Međutim, dvofazni uzorci pokazuju da nisu stabilni nakon pripreme i da se efikasnost detekcije smanjuje do 5 % već od 2. dana nakon pripreme (efikasnost se menja ako se uzorci naknadno mučkaju) - ovo su posledice ekstrakcije ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po u različitim koncentracijama u organsku fazu pri svakom narednom mučkanju ili migracije ^{214}Bi i ^{214}Pb iz koktela u vodenu fazu, a njihova stabilnost zavisi i od tipa koktela, viala, temperature itd.

U nastavku biće predstavljena LSC metoda koja se zasniva na detekciji alfa čestica emitovanih raspadom radona iz dvofaznih i monofaznih uzorka u scintilacionom koktelu tečnim scintilacionim brojačem. LSC metoda je optimizovana i prilagođena merenjima na Quantulus-u 1220TM.

5.3 Opis LSC metode

LSC tehnika je brza, jednostavna i jeftina, a mogućnost diskriminacije alfa/beta impulsa u tečnom scintilacionom brojaču Quantulus-u 1220TM osigurava pouzdana i tačna merenja. Sama metoda preporučena je od strane U.S Environmental Protection Agency (EPA Method 913.0, 1991). Zbog spomenutih prednosti homogenih uzoraka, metoda je prilagođena i optimizovana tako da se pripremaju homogeni uzorci. Posebnu pažnju treba obratiti da radon ne emanira iz vode prilikom uzorkovanja jer bi se u tom slučaju izmerile manje koncentracije aktivnosti od realnih.

5.3.1 Uzorkovanje i laboratorijska priprema

Ključan faktor od kog zavisi relevantnost rezultata je pravilno uzorkovanje. Uzorke treba prikupljati u staklenim flašama sa teflonskim čepovima koji ne dozvoljavaju difuziju radona tokom transporta do laboratorije. Da bi se izbegla emanacija radona iz vode u gasovitu fazu i time postigla pouzdanost i veća tačnost merenja, potrebno je da uzorak vode do vrha ispuni bocu tako da ne bude vazduha u njoj. Dakle, uzorak vode ne sme biti u kontaktu sa vazduhom (Todorović et al, 2012). Zbog toga je poželjno boce puniti pod što jačim mlazom vode, pod kojim ih treba i zatvoriti kad dođe do prelivanja boce vodom. Vreme uzorkovanja je bitno zabilježiti, jer ono predstavlja inicijalno vreme raspada radona, na osnovu kog će se u rezultatima izvršiti korekcija na raspad. Analiza uzoraka bi trebala da počne najkasnije tri dana nakon prijema uzorka u laboratoriju.

Gubici radona će biti manji ukoliko se koriste pipete sa širim nastavcima u kojima se uspostavlja laminaran tok uzorka vode. Treba izbegavati pribor koji bi izazvao turbulentno kretanje uzorka i radon bi se desorbovao iz vode (Salonen, 1993b; EPA Method 913.0, 1991). Priprema homogenog uzorka podrazumeva odmeravanje 10 ml uzorka vode u staklenim vialima zapremine 20 ml i mešanje sa 10 ml scintilacionog koktela koji se u potpunosti meša sa vodom. Istraživanja su pokazala da za nekoliko sekundi, koliko je boca sa uzorkom otvorena i u kontaktu sa vazduhom pri pipetiranju u viale, neće dovesti do značajne emanacije radona iz vode (Kitto, 1994). Zbog daleko većeg afiniteta prema organskoj fazi u odnosu na vodu, radon će difundovati iz uzorka voda u scintilacioni koktel za koji će se vezati. Upravo na toj činjenici zasniva se pouzdanost i relevantnost metode. Eksperimenti su pokazali da su na ovaj način pripremani uzorci stabilni tokom vremena i da zbog upotrebe staklenih viala nema emanacije radona iz uzorka.

Kod pripreme dvofaznih uzoraka inicijalno mučkanje uzoraka odmah nakon mešanja sa koktelom podstiče transfer radona u organsku fazu i dostizanje ravnotežnog stanja u vialu (stanje hemijske i radioaktivne ravnoteže se postiže u roku od 5 h), i da je vreme mučkanja (3 - 40 s) inverzno proporcionalno vremenu dostizanja ravnoteže, dok se u uzorcima koji nisu uopšte bili mučkani ravnoteža dostizala nakon 25 h (Kitto, 1994). Svako naredno mučkanje uzoraka remeti uspostavljenu ravnotežu (radon i njegovi potomci se vraćaju u vodenu fazu pa se u principu, mere sa nešto redukovanim efikasnošću) koja se dostiže nakon 2h ponovo. S obzirom da na difuziju radona utiču temperatura i pritisak, pripremljeni uzorci moraju pre merenja stajati par sati u laboratoriji radi postizanja ravnoteže u uzorku u laboratorijskim uslovima (na temperaturi 20 °C). Kada se u uzorku uspostavi ravnoteža radona i njegovih potomaka i kada se eleminišu hemiluminescentne i fotoluminescentne reakcije uzorak je spreman za merenje u tečnom scintilacionom brojaču. Predviđena su merenja u trajanju od 50 min.

Glavni nedostatak metode pripremanja homogenih uzoraka je što može doći do interferencije sa drugim radionuklidima (prvenstveno radijumom - ovaj problem ne postoji u metodi sa dvofaznim uzorcima jer radijum ostaje u vodi, a samo radon difunduje u organsku fazu). Iako u podzemnim vodama postoje i drugi radionuklidi, njihova koncentracija je 2 - 3 reda veličine niža od koncentracije radona, tako da se može smatrati da nema njihove interferencije u generisanim spektrima (Salonen, 1993b). Međutim, u površinskim vodama je koncentracija radona relativno mala, pa može sadržati približnu koncentraciju radijuma ili eventualno, urana. U tom slučaju potrebno je kao *background* uzeti upravo uzorak vode za merenje, iz koje je radon eliminisan npr. aeracijom vode azotom. Tako tretiran uzorak će sadržati sve radionuklide osim radona, i izmereni odbroj će se smatrati *background*-om.

5.3.2 Kalibracija sistema

Za kalibraciju sistema korišten je Radium Solution Method (EPA Method 913.0, 1991). Koristi se rastvor standarda radijuma ^{226}Ra (Czech Metrology Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation, pripremljen u rastvoru $1 \text{ g BaCl}_2 \text{ l}^{-1} + 10 \text{ g HCl l}^{-1}$, specifične aktivnosti $39,67(20) \text{ Bq ml}^{-1}$ na dan 01.10.2013, sa kombinovanom nesigurnosti 0,5%) koji nakon pripreme stoji 30 dana radi postizanja radioaktivne ravnoteže ^{226}Ra i ^{222}Rn .

Način pripreme kalibracionog standarda ($100 \text{ ml } ^{226}\text{Ra rastvora; C = 1,3 kBql}^{-1}$) je sledeći:

1. U sudu zapremine 100 ml odmeri se 20 ml destilovane vode, 0.5 ml koncentrovane HNO_3 , i njihova početna masa se izmeri na analitičkoj vagi.
2. Ispipetira se potrebna masa standardnog kalibracionog izvora radijuma u sud postavljen na analitičkoj vagi.
3. Dobijeni radioaktivni rastvor se dopuni destilovanom vodom do zapremine 100 ml i koristi za dalju pripremu kalibracionih uzorka u kojima je pomešano 10 ml pripremljenog radioaktivnog rastvora sa 10 ml scintilacionog koktela u staklenim vialima.

Nakon što radijum i radon uđu u radioaktivnu ravnotežu (~30 dana) merenja se sprovode u više ciklusa u trajanju od po 50 min. Pre merenja, ostavljaju se 3 sata u mraku radi eliminacije eventualnih fotoluminescentnih reakcija.

Background uzorci pripremaju se odmeravanjem 10 ml destilovane vode i 10 ml scintilacionog koktela u staklenim vialima i mere se i u svrhu kalibracije sistema i kasnije, u svakom setu uzorka voda u kojima se određuje sadržaj radona.

5.3.2.1 Kalibracioni faktor

Kalibracioni faktor, \mathbf{CF} [$\text{min}^{-1} \text{Bq}^{-1}$], koji zapravo predstavlja efikasnost detekcije ^{226}Ra , odnosno ^{222}Rn , računa se prema izrazu (Todorović et al, 2014):

$$CF = \frac{S - B}{C \cdot V} \quad 5.1$$

gde su:

S [min^{-1}] – odbroj radijumovog standarda;

B [min^{-1}] – odbroj *background-a*;

C [Bq l^{-1}] – koncentracija aktivnosti kalibracionog ^{226}Ra standarda u ravnoteži sa ^{222}Rn ;

V [l] – zapremina merenog standarda.

5.3.2.2 Koncentracija aktivnosti i merna nesigurnost

Koncentracija aktivnosti ^{222}Rn u uzorcima voda, kao i njena 2σ merna nesigurnost dobijaju se na osnovu izraza (Todorović et al, 2014):

$$A(^{222}\text{Rn})[\text{Bql}^{-1}] = \frac{G - B}{CF \cdot D \cdot V} [\text{Bql}^{-1}] \quad 5.2$$

$$2\delta[\text{Bql}^{-1}] = \frac{2(\frac{G}{T_G} + \frac{B}{T_B})^{\frac{1}{2}}}{CF \cdot D \cdot V} [\text{Bql}^{-1}] \quad 5.3$$

gde su:

G [min^{-1}] – ukupan odbroj uzorka;

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

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

$T_{1/2}$ (^{222}Rn) = 3,824 dana;

V [l] – zapremina uzorka;

T_B [min] – vreme merenja *background-a*;

T_G [min] – vreme merenja uzorka.

5.3.2.3 Minimalna detektibilna aktivnost (MDA)

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

$$MDA = \frac{2,71 + 4,65\sqrt{B \cdot T_B}}{CF \cdot D \cdot V \cdot T_B} \quad 5.4$$

gde je T_B (min) vreme merenja *backgrounda-a*, B – odbroj *blank-a*. CF – kalibracioni faktor, V – zapremina uzorka i D – korekcioni faktor raspada.

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

$$MDA_U = \frac{4,65 \sqrt{u(B)}}{CF \cdot V} \quad 5.5$$

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

Opadanje granice detekcije (MDA) sa vremenom predstavlja trend i kod gama i alfa spektrometrije. Tako da vreme merenja govori koliko se niska koncentracije aktivnosti može postići. Upravo je to eksperimentalno pokazano u radu (Guogang J, 2012). Parametri koji takođe utiču na MDA su: količina uzorka, *background* i efikasnost detekcije (Currie, L.A., 1968). Opšti zaključak jeste da se MDA smanjuje po eksponencijalnom zakonu i za prilično duga merenja postaje praktično konstantna.

5.3.2.4 Figure of merit (FOM)

Optimizacija prozora se vrši na osnovu izmerene vrednosti *figure of merit* (FOM), parametra koji određuje kvalitet metode merenja za izabrani region:

$$FOM = \frac{(\text{Efficiency [%]})^2}{\text{Background} [\text{min}^{-1}]} \quad 5.6$$

Optimizacija se sprovodi na osnovu snimanja spektara: (1) uzorka radionuklida od interesa i (2) *background*-a, u cilju dobijanja maksimalne vrednosti FOM, što omogućuje izbor regiona. Podešeni region je optimalan isključivo za dati radionuklid, veličinu uzorka, vrstu viala i hemijski sastav koktel-uzorak (kao i nivo prigušenja) i korišćeni LSA instrument.

5.3.2.5 Scintilacioni kokteli

Dalja optimizacija metoda je uključila dodatne scintilacione koktele:

- **Ultima Gold AB** – specijalno napravljen da dobro razdvaja alfa spektar od beta spektra, dobro se meša sa vodom i sa različitim kiselinama. Prema specifikaciji vrlo je stabilan po pitanju *quench*-a.
- **Mineral Oil Scintillator** – ovaj scintilacioni koktel ne sadrži emulzifajere i deklarisani je da je odgovarajući samo za organske uzorce jer se ne meša sa vodom i vodenim rastvorima. Ali se naglašava da je posebno pogodan za merenje ^{222}Rn u vodi – jer ima sposobnost da ekstrahuje sav radon iz vode u koktel.

- **Opti Fluor O** – i ovaj scintilacioni koktel se ne meša sa vodom i vodenim rastvorima i kao takav je deklarisan kao “čisti” organski koktel. Pokazuje nizak stepen foto i hemoluminescencije.
- **Ultima Gold F** – ovaj koktel se takođe može koristiti pre svega za organske uzorke jer se ne meša sa vodom, ali pokazuje izuzetno dobru stabilnost po pitanju *quench-a*.

6 Rezultati

Prilikom kalibracije tečnog scintilacionog detektora za merenje ^{222}Rn u vodi korištena je EPA metoda 913.0 (913.0, EPA Method, 1991). Metoda podrazumeva mešanje uzorka vode sa organskim scintilacionim koktelom.

6.1 Pripremanje uzorka

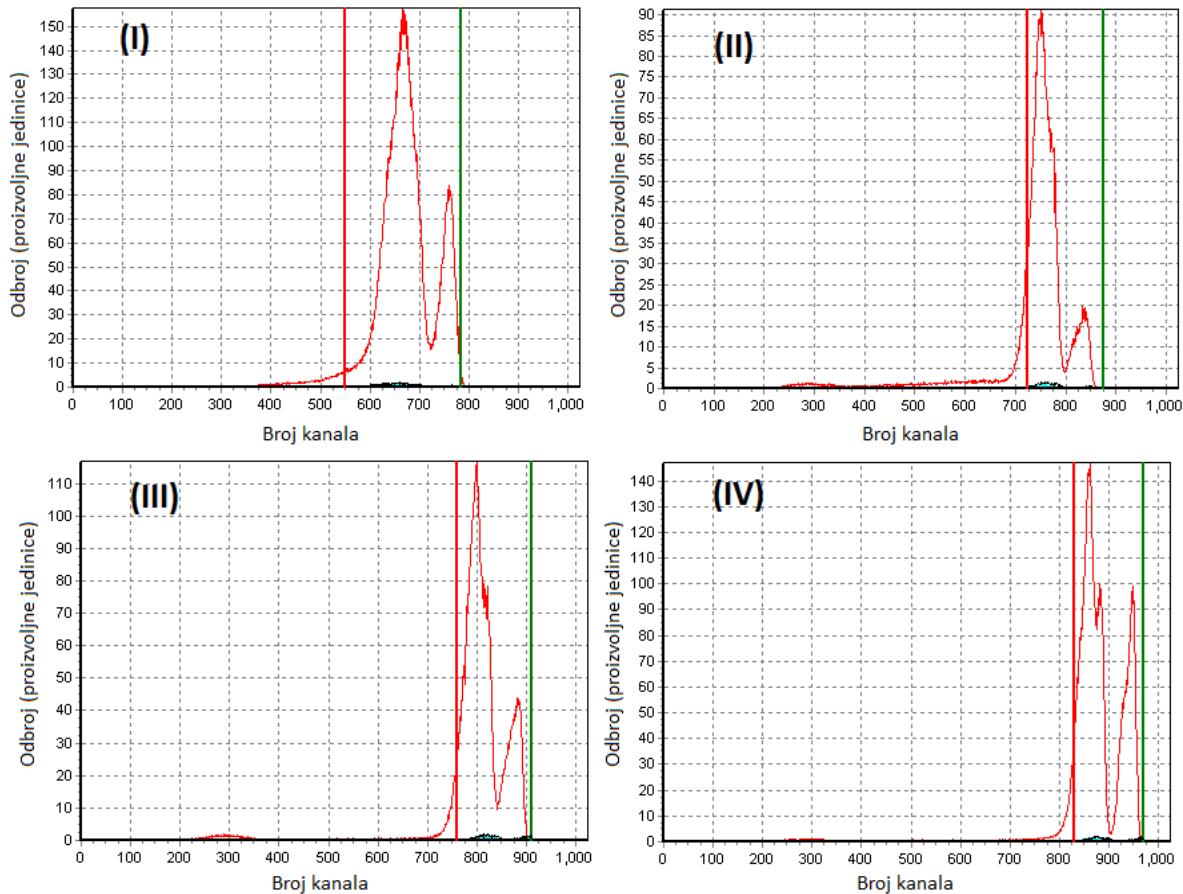
Za kalibraciju je korišćen voden rastvor ^{226}Ra , proizveden od strane Češkog Metrološkog Instituta, aktivnosti 37.472 Bq/ml sa kombinovanom mernom nesigurnošću od 0.5% na referentni datum 01.10.2013. Kalibracioni uzorci koji su korišteni u ovom radu pravljeni su 02.02.2016. godine. Svaki vial je pripremljen sa 4 koktela. U tabeli koja sledi biće prikazana koncentracija aktivnosti kalibracionih uzorka i uzorka za proveru kao i njihov način pripreme.

Tabela 6.1 Kalibracioni uzorci i uzorci za proveru

Kalibracioni uzorci	A (Bql ⁻¹)
1. 10 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 20 ml Ra	79
2. 10 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 30 µl Ra	119
3. 10 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 50 µl Ra	198
4. 9,8 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 0,2 ml Ra	793
5. 9,65 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 0,35 ml Ra	1388
6. 9,45 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 0,55 ml Ra	2182
7. 9,15 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 0,85 ml Ra	3372
8. 8,5 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 1,5 ml Ra	5950
9. 8,2 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 1,8 ml Ra	7140
Uzorci za proveru	A (Bql ⁻¹)
1. 9 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 1 ml Ra	3967
2. 9,55 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 0,45 ml Ra	1785
3. 10 ml H ₂ O + 10 ml scin. + 40 µl Ra	159
4. 30 µl Ra i 70 µl H ₂ O (4 viala – 25 µl) + 10 ml H ₂ O + 10 ml scin.	30
5. 35 µl Ra i 205 µl H ₂ O (8 viala – 30 µl) + 10 ml H ₂ O + 10 ml scin.	17
6. 50 µl Ra i 150 µl H ₂ O (4 viala – 50 µl) + 10 ml H ₂ O + 10 ml scin.	49
Blank: 10 ml H ₂ O + 10 ml scintilatora	

6.2 Spektri kalibracionih uzoraka

Spektri za navedene uzorke koji su pripremljeni sa scintilacionim koktelima prikazani su na slici 6.1. Spektar pod rednim brojem (I) odnosi se na uzorak koji je pomešan sa scintilacionim koktelom *Ultima Gold AB* i pripada jednofaznoj metodi.



Slika 6.1 Izgled spektara u optimalnom prozoru 4 uzorka pripremljenih sa različitim scintilacionim koktelima. (I) Ultima Gold AB; (II) Mineral Oil; (III) Opti-Fluor O; (IV) Ultima Gold F.

Dok ostali spektri pripadaju dvofaznoj metodi i potiču od uzoraka koji su pomešani sa scintilacionim koktelima (II) Mineral Oil, (III) Opti-Fluor O, (IV) Ultima Gold F respektivno.

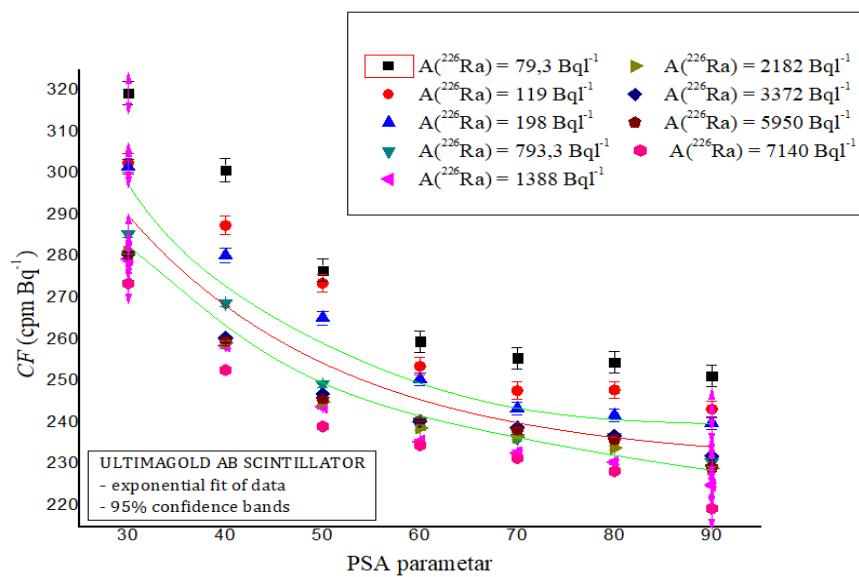
Spektri su prikazani u optimalnim prozorima. Optimizacija se sprovodi na osnovu snimanja spektra uzorka radionuklida od interesa i *backgrounda*-a u cilju dobijanja maksimalne vrednosti FOM, što omogućuje izbor regiona, odnosno optimalni prozor.

6.3 Kalibracione krive

Nakon što su definišani optimalni prozori očitane se vrednosti odbroja (S) uzoraka i odbroja (B) *blank*-ova i na osnovu tih vrednosti izračunat je CF. Postupak kalibracije se vrši istraživanjem uticaja nivoa PSA diskriminatora na ^{222}Rn CF, koristeći kalibracioni standard ^{226}Ra u širokom opsegu koncentracija aktivnosti. Varijacije PSA utiču na vrednosti kalibracionog faktora (CF) koji zatim utiče na izračunatu aktivnost ^{222}Rn uzorka. PSA parametar se fiksira tokom merenja i određivanja kalibracionog faktora (CF) i u tom slučaju PSA ne utiče na određivanje ^{222}Rn . Vrednosti PSA parametra kreću se od 30 do 90, sa korakom od 10. CF se računa prema relaciji 5.1.

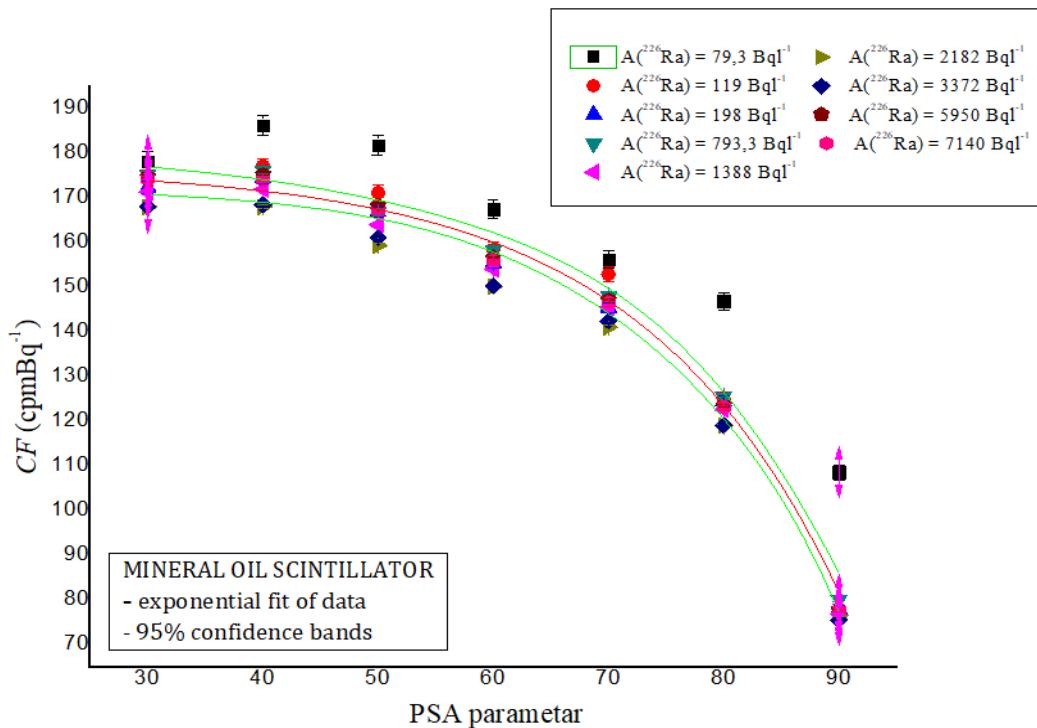
CF predstavljen je u funkciji od PSA parametra i dobijene su zavisnosti za svaki od koktela. U nastavku biće prikazani grafici na kojima se vidi zavisnost kalibracionog faktora od PSA parametra za sve scintilacione koktele.

Prvi grafik prikazuje zavisnost kalibracionog faktora od PSA za monofazni scintilacioni koktel *Ultima Gold AB*

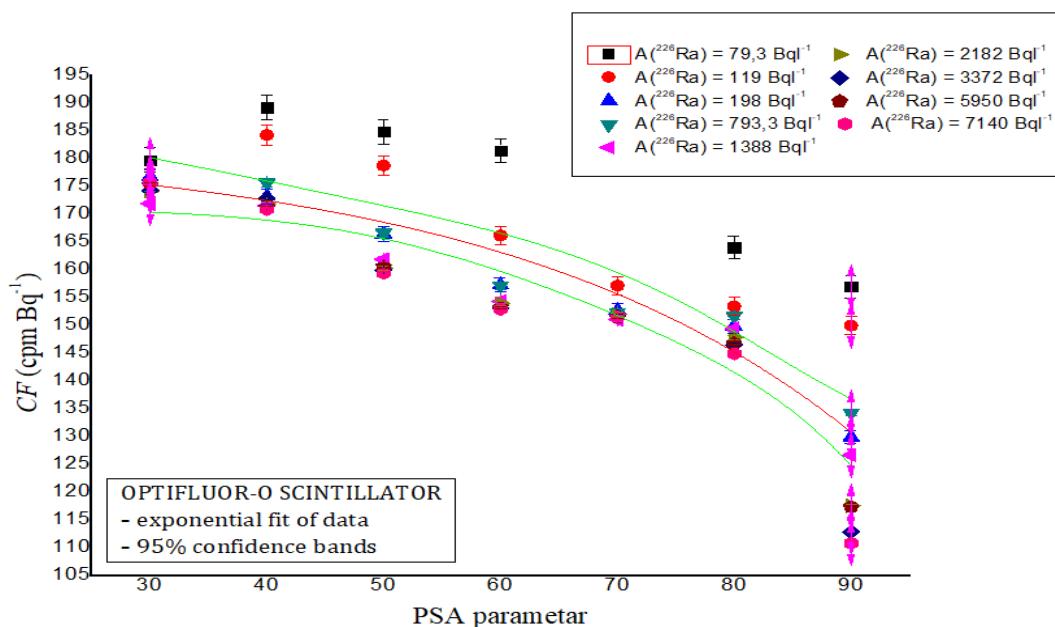


Slika 6.2 CF na različitim postavkama PSA parametra za različite koncentracije aktivnosti uzorka sa scintilacionim koktelom *Ultima Gold AB*.

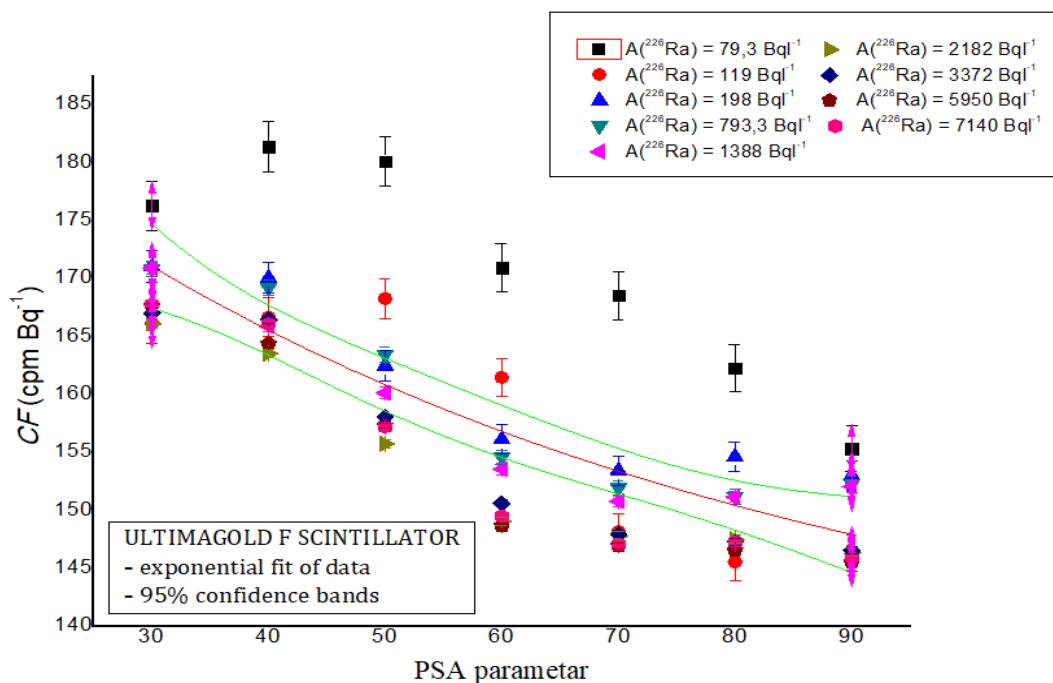
Slede grafici zavisnosti kalibracionih faktora od PSA parametara kod scintilacionih koktela koji formiraju dvofazne uzorke (*Mineral Oil Scintillator, Opti-Fluor O i Ultima Gold F*).



Slika 6.3 *CF na različitim postavkama PSA parametra za različite koncentracije aktivnosti uzorka sa scintilacionim koktelom Mineral Oil.*



Slika 6.4 *CF na različitim postavkama PSA parametra za različite koncentracije aktivnosti uzorka sa scintilacionim koktelom Opti Fluor-O.*



Slika 6.5 CF na različitim postavkama PSA parametra za različite koncentracije aktivnosti uzorka sa scintilacionim koktelom Ultima Gold F.

Optimalni prozori u alfa spektrima za sve scintilatore i kalibracione jednačine kalibracionih uzoraka prikazani su u tabeli 6.2.

Tabela 6.2 Optimalni prozori i kalibracione krive

Scintilator	Optimalni prozor u alfa spektru [channels]	Kalibraciona jednačina, CF vs. PSA
Ultima Gold AB	550-785	CF = 230(5) + 232(69) * exp[-PSA/22(5)] R ² = 0,7244
Ultima Gold F	830-970	CF = 133(18) + 61(8) * exp[-PSA/64(47)] R ² = 0,6265
Mineral Oil	725-875	CF = 177(2) - 0,52(22) * exp[PSA/17(1)] R ² = 0,9551
Opti-Fluor O	760-910	CF = 182(7) - 3(3) * exp[PSA/30(10)] R ² = 0,7093

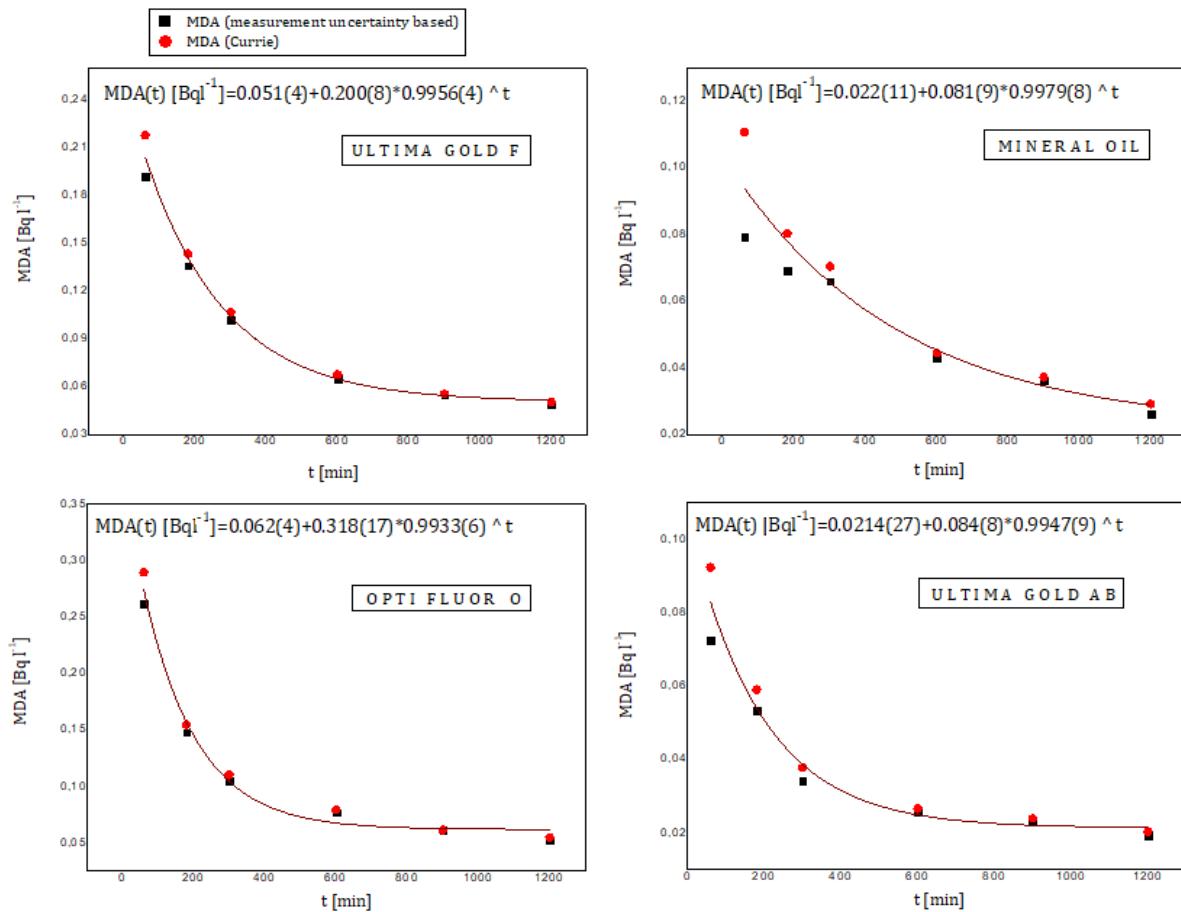
Uz pomoć kalibracionih jednačina, koje su prikazane u tabeli 6.2 izračunat je CF za sve vrednosti PSA parametra. Zatim je izvršena provera nad uzorcima koji su posebno pripremljeni za tu namenu.

6.4 Određivanje minimalne detektibilne aktivnosti (MDA)

Kako bi se odredila minimalna detektibilna aktivnost bilo kog uzorka, potrebno je *blank* uzorak (slepu probu, uzorak koji u sebi ne sadrži radon) meriti različito vreme. Kao *blank* uzorak korišćena je destilovana voda za koju smo sigurni da u sebi ne sadrži ^{222}Rn . Vreme merenja koje je zadato Quantulus-u iznosilo je 60, 180, 300, 600 i 1200 minuta. Na osnovu dobijenih odbroja izračunata je postignuta granica detekcije za svako zadato vreme, te su dobijene funkcionalne zavisnosti MDA od vremena merenja prikazane na slici 6.6. Jasno se uočava eksponencijalni trend opadanja MDA sa vremenom merenja. Na graficima se vidi prilično dobro slaganje Kirijeve krive sa krivom merne nesigurnosti *blank*-a. Vrednost PSA parametra nema uticaja pri snimanju minimalne detektibilne aktivnosti (MDA) za *blank* uzorak pa je zato u svim merenjima *blank* uzorka PSA vrednost bila podešena na 70.

Minimalna detektibilna aktivnost (MDA) [$\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$] određuje se na osnovu Kirijeve formule (5.4) ili na osnovu merne nesigurnosti *blank*-a – relacija (5.5)

Na sledećoj slici vide se grafici sva četiri scintilatora.



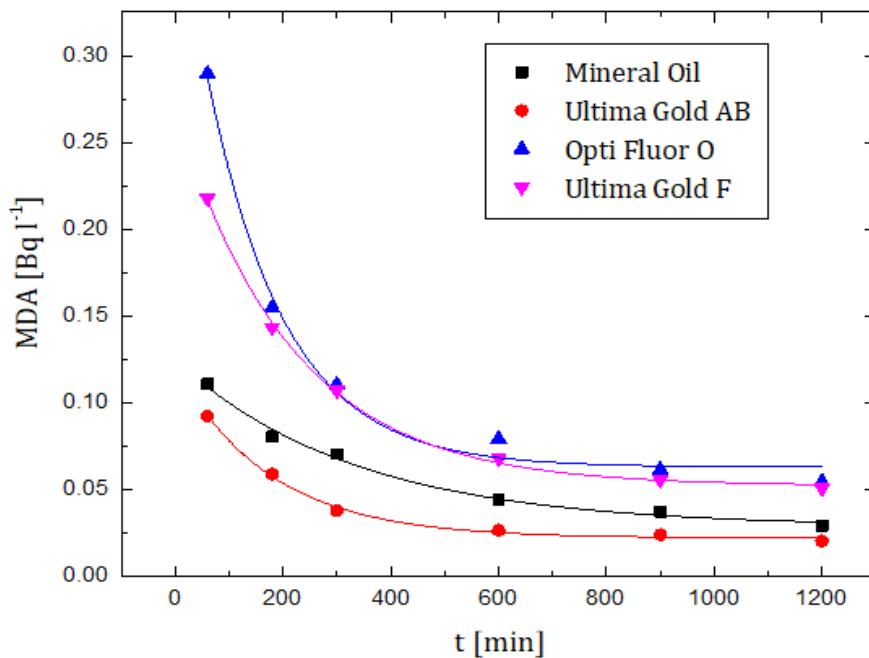
Slika 6.6 Zavisnost MDA od vremena kod svih scintilatora

Fitovi su dobijeni na osnovu izmerenih odbroja i izračunatih MDA vrednosti za zadato vreme merenje, a na osnovu njih je računata MDA za 300 min:

Tabela 6.2 Vrednosti MDA i MDA jednačine

Scintillator	SQP(E)	MDA jednačina	MDA [Bq l⁻¹] PSA=70 300 min
UltimaGold AB	776.0	$MDA(t) \text{ Bq l}^{-1} = 0.0214(27) + 0.084(8)*0.9947(9)^t$ $R^2 = 0.9475$	0.038
UltimaGold F	957.5	$MDA(t) \text{ Bq l}^{-1} = 0.051(4) + 0.200(8)*0.9956(4)^t$ $R^2 = 0.9863$	0.104
Mineral Oil Scintillator	874.4	$MDA(t) \text{ Bq l}^{-1} = 0.022(11) + 0.081(9)*0.9979(8)^t$ $R^2 = 0.8946$	0.065
Opti-Fluor O	894.0	$MDA(t) \text{ Bq l}^{-1} = 0.062(4) + 0.318(17)*0.9933(6)^t$ $R^2 = 0.9847$	0.104

Sledeći grafik (slika 6.7) sadrži sva četiri scintilatora.



Slika 6.7 Zavisnost MDA od vremena kod četiri scintilatora

Podaci su dati samo za Kirijevu formulu, pa se fitovi blago razlikuju, kao i vrednosti MDA za 300 min.

6.5 Provera – rezultati za jednofaznu i dvofaznu metodu

Koncentracije aktivnosti uzorka za proveru su poznate a eksperimentalne vrednosti koncentracija aktivnosti dobijene su uz pomoć jednačine:

$$A_{ex} = \frac{S - B}{CF \cdot V} \quad 6.1$$

gde su:

- S (min^{-1}) – odbroj uzorka
- B (min^{-1}) – odbroj *blank-a*
- CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$) – kalibracioni faktor
- V (l) – zapremina merenog standarda.

Eksperimentalno dobijene vrednosti koncentracije aktivnosti kod uzorka za proveru pri određenim vrednostima PSA parametra i kalibracionog faktora biće prikazane u sledećim tabelama. Takođe izračunato je relativno odstupanje i Z score. Prvo su predstavljeni rezultati za jednofazni metod sa scintilacionim koktelom Ultima Gold AB, tabela 6.3.

Tabela 6.3 Ultima Gold AB

Ultima Gold AB							
PSA 30							
A (^{226}Ra) (Bql^{-1})	S (cpm)	B(cpm)	CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$)	V (l)	A_{ex} (Bql^{-1})	Z	δ (%)
3967	11554 (15)	0,11 (2)	289 (26)	0,01	3993 (358)	0,1	0,7
1785	4930 (10)				1704 (153)	-0,5	4,5
159	471 (3)				163 (15)	0,3	2,6
30	106 (1)				37 (3)	2,1	23,6
17	51 (1)				17 (2)	0,1	1,1
49	148 (2)				51 (5)	0,4	3,3

PSA 40							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	10684 (15)	0,11 (2)	268 (20)	0,01	3991 (295)	0,1	0,6
1785	4550 (10)				1700 (126)	-0,7	4,8
159	471 (3)				176 (13)	1,3	10,9
30	101 (1)				38 (3)	2,9	26,8
17	47 (1)				17 (1)	0,1	0,9
49	132 (2)				49 (4)	0,0	0,2
PSA 50							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	10159 (14)	0,11 (2)	254 (15)	0,01	4001 (238)	0,1	0,9
1785	4296 (9)				1692 (101)	-0,9	5,2
159	413 (3)				163 (10)	0,4	2,4
30	98 (1)				38 (2)	3,8	29,6
17	43 (1)				17 (1)	-0,3	1,7
49	132 (2)				52 (3)	0,9	5,5
PSA 60							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	9875 (14)	0,11 (2)	245 (12)	0,01	4028 (190)	0,3	1,5
1785	4168 (9)				1700 (80)	-1,1	4,8
159	395 (3)				161 (8)	0,3	1,4
30	91 (1)				37 (2)	4,2	24,5
17	42 (1)				17 (1)	-0,1	0,3
49	126 (2)				51 (2)	0,8	3,7

PSA 70							
A (^{226}Ra) (Bql^{-1})	S (cpm)	B(cpm)	CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql^{-1})	Z	δ (%)
3967	9814 (14)	0,11 (2)	240 (9)	0,01	4095 (154)	0,8	3,2
1785	4103 (9)				1712 (65)	-1,1	4,1
159	375 (3)				156 (6)	-0,4	1,5
30	87 (1)				36 (1)	4,8	21,9
17	51 (1)				21 (1)	5,0	23,5
17	40 (1)				17 (1)	-0,7	2,7
49	119 (2)				50 (2)	0,2	0,8

PSA 80							
A (^{226}Ra) (Bql^{-1})	S (cpm)	B(cpm)	CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql^{-1})	Z	δ (%)
3967	9738 (14)	0,11 (2)	236 (7)	0,01	4124 (128)	1,2	4,0
1785	4068 (9)				1723 (54)0	-1,2	3,5
159	375 (3)				159 (5)	0,0	0,0
30	83 (1)				35 (1)	4,8	17,6
17	41 (1)				17 (1)	-0,3	1,0
49	119 (1)				50 (2)	0,7	2,3

PSA 90							
A (^{226}Ra) (Bql^{-1})	S (cpm)	B(cpm)	CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql^{-1})	Z	δ (%)
3967	9501 (14)	0,11 (2)	234 (6)	0,01	4063 (109)	0,9	2,4
1785	3934 (9)				1682 (45)	-2,3	5,8
159	380 (3)				162 (4)	0,8	2,3
30	87 (1)				37 (1)	7,5	25,0
17	40 (1)				17 (1)	-0,2	0,7
49	116 (2)				50 (1)	0,3	0,7

Zatim slede rezultati za dvofazni metod sa tri različita scintilatora: Mineral Oil, Opti-Fluor O i Ultima Gold F respektivno:

Tabela 6.4 Mineral Oil

Mineral Oil							
PSA 30							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	7101 (12)	0,08 (2)	174 (2)	0,01	4082 (56)	2,0	2,9
1785	3129 (8)				1799 (25)	0,6	0,8
159	278 (2)				160 (2)	0,4	0,6
30	51 (1)				29,4 (4)	-0,6	0,8
17	28 (1)				15,9 (2)	-6,4	8,1
49	85 (1)				48,7 (7)	-1,0	1,4
PSA 40							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	7109 (12)	0,08 (2)	172 (3)	0,01	4144 (76)	2,3	4,5
1785	3138 (8)				1829 (34)	1,3	2,5
159	282 (2)				164 (3)	1,9	3,7
30	53 (1)				31 (1)	1,9	3,6
17	28 (1)				16,5 (3)	-2,6	4,5
49	88 (1)				51,2 (9)	2,0	3,9

PSA 50							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	6832 (12)	0,08 (2)	167 (5)	0,01	4087 (120)	1,0	3,0
1785	2991 (8)				1789 (53)	0,1	0,2
159	272 (2)				162 (5)	0,8	2,4
30	50 (1)				30 (1)	0,0	0,1
17	25 (1)				15,0 (4)	-5,3	13,6
49	87 (1)				52 (2)	1,7	5,2

PSA 60							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	6399 (11)	0,08 (2)	159 (9)	0,01	4018 (217)	0,2	1,3
1785	2795 (8)				1755 (95)	-0,3	1,7
159	249 (2)				156 (8)	-0,3	1,5
30	45 (1)				28 (2)	-0,9	4,8
17	23 (1)				15 (1)	-3,3	15,1
49	81 (1)				51 (3)	0,4	2,4

PSA 70							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	6029 (11)	0,08 (2)	145 (16)	0,01	4156 (449)	0,4	4,8
1785	2627 (7)				1811 (196)	0,1	1,4
159	238 (2)				164 (18)	0,3	3,3
30	43 (1)				30 (3)	0,0	0,0
17	22 (1)				15 (2)	-1,4	13,4
49	72 (1)				49 (5)	0,0	0,1

PSA 80							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	5037 (10)	0,08 (2)	119 (29)	0,01	4215 (1028)	0,2	6,3
1785	2212 (7)				1851 (452)	0,1	3,7
159	199 (2)				167 (41)	0,2	5,1
30	37 (1)				31 (8)	0,2	4,1
17	19 (1)				16 (4)	-0,5	10,3
49	69 (1)				57 (14)	0,6	16,2

PSA 90							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	3171 (8)	0,08 (2)	73 (54)	0,01	4317 (3200)	0,1	8,8
1785	1384 (5)				1885 (1397)	0,1	5,6
159	128 (2)				174 (129)	0,1	9,9
30	23 (1)				31 (23)	0,1	5,6
17	12 (1)				16 (12)	-0,1	7,6
49	49 (1)				67 (50)	0,4	35,3

Tabela 6.5 Opti – Fluor O

Opti – Fluor O							
PSA 30							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	7141 (12)	0,19 (3)	174 (11)	0,01	4108 (254)	0,6	3,6
1785	3122 (8)				1796 (111)	0,1	0,6
159	282 (2)				162 (10)	0,4	2,3
30	52 (1)				30 (2)	0	0,3
17	29 (1)				17 (1)	-0,7	4,2
49	88 (1)				51 (3)	0,4	2,5
PSA 40							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	7014 (12)	0,19 (3)	171 (13)	0,01	4111 (322)	0,4	3,6
1785	3080 (8)				1805 (141)	0,1	1,1
159	277 (2)				162 (13)	0,3	2,4
30	52 (1)				30 (2)	0,3	2,4
17	27 (1)				16 (1)	-1,4	9,8
49	91 (1)				53 (4)	0,9	7,3

PSA 50							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	6526 (12)	0,19 (3)	166 (17)	0,01	3928 (411)	-0,1	1,0
1785	2894 (8)				1742 (182)	-0,2	2,4
159	264 (2)				159 (17)	0,0	0,1
30	51 (1)				30 (3)	0,2	2,2
17	28 (1)				17 (2)	-0,2	2,0
49	90 (1)				54 (6)	0,8	9,5
PSA 60							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	6262 (11)	0,19 (3)	160 (23)	0,01	3918 (570)	-0,1	1,2
1785	2745 (7)				1717 (250)	-0,3	3,8
159	246 (2)				154 (22)	-0,2	3,1
30	50 (1)				31 (5)	0,4	5,9
17	26 (1)				16 (2)	-0,4	5,6
49	89 (1)				56 (8)	0,8	12,7

PSA 70							
A (^{226}Ra) (Bql^{-1})	S (cpm)	B(cpm)	CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql^{-1})	Z	δ (%)
3967	6183 (11)	0,19 (3)	151 (32)	0,01	4093 (859)	0,1	3,2
1785	2708 (7)				1792 (376)	0	0,4
159	244 (2)				162 (34)	0,1	1,9
30	50 (1)				33 (7)	0,5	11,2
17	27 (1)				18 (4)	0,2	4,3
49	80 (1)				53 (11)	0,3	7,6
PSA 80							
A (^{226}Ra) (Bql^{-1})	S (cpm)	B(cpm)	CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql^{-1})	Z	δ (%)
3967	5956 (11)	0,19 (3)	139 (44)	0,01	4291 (1352)	0,2	8,2
1785	2652 (7)				1910 (602)	0,2	7,0
159	241 (2)				173 (55)	0,3	9,2
30	47 (1)				34 (11)	0,4	14,3
17	24 (1)				17 (6)	0	1,0
49	77 (1)				55 (17)	0,3	12,1
PSA 90							
A (^{226}Ra) (Bql^{-1})	S (cpm)	B(cpm)	CF ($\text{min}^{-1}\text{Bq}^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql^{-1})	Z	δ (%)
3967	4657 (10)	0,19 (3)	122 (61)	0,01	3825 (1906)	-0,1	3,6
1785	2319 (7)				1905 (949)	0,1	6,7
159	195 (2)				160 (80)	0	1,0
30	44 (1)				36 (18)	0,4	21,3
17	24 (1)				19 (10)	0,2	12,6
49	78 (1)				64 (32)	0,5	30,3

Tabela 6.6 Ultima Gold F

Ultima Gold F							
PSA 30							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	6158 (11)	0,10 (2)	171 (23)	0,01	3597 (480)	-0,8	9,3
1785	2996 (8)				1722 (226)	-0,3	3,5
159	288 (2)				166 (22)	0,3	4,4
30	48 (1)				28 (4)	-0,5	6,4
17	29 (1)				16 (2)	-0,4	5,0
49	84 (1)				48 (6)	-0,1	1,9
PSA 40							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	6094 (11)	0,10 (2)	166 (24)	0,01	3679 (529)	-0,5	7,3
1785	2959 (8)				1786 (257)	0	0,1
159	291 (2)				176 (25)	0,7	10,8
30	49 (1)				30 (4)	0	0,2
17	28 (1)				17 (2)	-0,3	4,3
49	87 (1)				53 (8)	0,4	6,9

PSA 50							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	5836 (11)	0,10 (2)	161 (24)	0,01	3626 (549)	-0,6	8,6
1785	2826 (7)				1624 (228)	-0,7	9,0
159	273 (2)				157 (22)	-0,1	1,0
30	46 (1)				26 (4)	-0,9	11,0
17	26 (1)				15 (2)	-1,1	13,8
49	81 (1)				47 (7)	-0,4	5,4
PSA 60							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	5526 (11)	0,10 (2)	157 (25)	0,01	3522 (552)	-0,8	11,2
1785	2685 (7)				1711 (268)	-0,3	4,1
159	260 (2)				166 (26)	0,3	4,3
30	43 (1)				27 (4)	-0,6	8,2
17	25 (1)				16 (2)	-0,7	10,0
49	79 (1)				50 (8)	0,1	1,6

PSA 70							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	5470 (11)	0,10 (2)	153 (25)	0,01	3565 (569)	-0,7	10,1
1785	2652 (7)				1728 (276)	-0,2	3,2
159	257 (2)				167 (27)	0,3	5,5
30	44 (1)				29 (5)	-0,2	3,8
17	25 (1)				16 (3)	-0,4	6,3
49	75 (1)				49 (8)	-0,1	1,0
PSA 80							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	5462 (11)	0,10 (2)	150 (24)	0,01	3630 (584)	-0,6	8,5
1785	2616 (7)				1739 (280)	-0,2	2,6
159	261 (2)				173 (28)	0,5	9,1
30	43 (1)				28 (8)	-0,3	4,1
17	25 (1)				16 (3)	-0,4	6,3
49	73 (1)				49 (8)	-0,1	1,5
PSA 90							
A (^{226}Ra) (Bql$^{-1}$)	S (cpm)	B(cpm)	CF (min$^{-1}$Bq$^{-1}$)	V (l)	Aex (Bql$^{-1}$)	Z	δ (%)
3967	5431 (11)	0,10 (2)	148 (24)	0,01	3671 (590)	-0,5	7,5
1785	2646 (7)				1788 (288)	0	0,2
159	253 (2)				171 (28)	0,4	7,8
30	42 (1)				28 (5)	-0,3	4,9
17	24 (1)				16 (3)	-0,5	7,7
49	75 (1)				50 (8)	0,1	2,0

7 Evaluacija metoda – realni uzorci

Uzorci iz Niške Banje (radonska banja) uzeti su radi testiranja jednofaznog i dvofaznog metoda. Niška Banja prepoznatljiva je po visokoj koncentraciji radona. Uzorci su pripremljeni tako što se direktno pomešalo 10 ml vode i 10 ml scintilacionog koktela. Takođe ovi uzorci su mereni na RAD7 detektoru i rezultati su upoređivani (tabela 7.1). U svim merenjima LSC tehnikom (za sva četiri scintilaciona koktela) vrednost PSA iznosila je 70.

Tabela 7.1 Evaluacija LSC metoda, poređenje sa rezultatima dobijenim RAD7 detektorom

Uzorci vode ID	RAD7 A [Bq l ⁻¹]	LSC UGAB A [Bq l ⁻¹]	LSC UGF A [Bq l ⁻¹]	LSC MOS A [Bq l ⁻¹]	LSC OFO A [Bq l ⁻¹]
Uzorak 1	601 ± 5	429 ± 5	612 ± 7	674 ± 11	586 ± 12
Uzorak 2	37.2 ± 2.4	27.6 ± 0.8	38.5 ± 1.2	41.4 ± 1.3	36.7 ± 1.3
Uzorak 3	6.6 ± 0.3	5.1 ± 0.3	7.1 ± 0.5	8.1 ± 0.5	6.9 ± 0.5

Upoređivanjem dobijenih rezultata sa rezultatima RAD7 detektora koje uzimamo kao referentne, jednofazni metod i UGAB scintilacioni koktel pokazuju niže vrednosti (ispod proseka), dok dvofazni metod sa MOS koktelom je pokazao više vrednosti (iznad proseka). Takođe za vreme procjene sa spajkovanim uzorcima (^{226}Ra), dobijeni rezultati sa UGAB nisu bili dobri. Glavni razlog za natprosječne rezultate kod MOS koktela je mešanje alfa i beta događaja jer PSA parametar nije bio podešen pravilno, za ovaj koktel vrednost PSA treba biti iznad 60. Ostali kokteli, UGF i OFO koji pripadaju dvofaznom metodu i sa kojima su vršena merenja pokazali su veoma dobro slaganje sa koncentracijama aktivnosti dobijenih RAD7 detektorom za sve analizirane uzorke prikazane u tabeli 7.1.

Uzorak najveće aktivnosti je bio pripremljen odmah nakon uzimanja uzorka i izmeren 2 dana kasnije, pa je zatim isti uzorak meren 20 dana nakon uzimanja uzorka s ciljem da se testira stabilnost pripremljenog uzorka za LSC merenje kao i primenjivost LSC metoda za merenja ^{222}Rn u vodi u slučaju dužeg vremenskog intervala od uzorkovanja do merenja. Dobijeni rezultati su prikazani u tabeli 7.2. Testirani su i jednofazni metod sa UGAB koktelom i dvofazni metod sa UGF koktelom.

Tabela 7.2 Test LSC metoda

Uzorak ID	Vreme između uzorkovanja i merenja [days]	LSC UGAB A [Bq l ⁻¹]	LSC UGF A [Bq l ⁻¹]
Uzorak 1	2	429 ± 5	612 ± 7
	20	420 ± 61	671 ± 79

Iz dobijenih rezultata prikazanih u tabeli 7.2 može se zaključiti da je sa uzorkom visoke aktivnosti moguće dobiti pouzdane rezultate čak i nakon 20 dana od uzorkovanja (više od 6 poluživota ^{222}Rn). Preciznost i nije tako dobra ali to je očekivano zbog manjeg odbroja. Ovo je unikatna mogućnost LSC metoda za merenja ^{222}Rn u vodi.

8 Zaključak

Sposobnost detekcije niskih koncentracija aktivnosti radionuklida LSC tehnike spojena sa mogućnošću alfa-beta diskriminacije daje jednostavno simultano određivanje alfa i beta aktivnosti. Sve ove karakteristike mogu se primeniti na određivanje aktivnosti ^{222}Rn u vodi. Radon ima mnogo veći afinitet prema scintilacionom koktelu nego za vodu, stoga lako prelazi iz uzorka u koktel. Na taj način osigurana je veća efikasnost detekcije i stabilniji uzorak, zbog čega i nakon dužeg perioda između pripreme uzorka i merenja dobijamo dobre rezultate. Kada uzorak vode dođe u dodir sa scintilacionim koktelom, sav radon se veže za koktel i tu ostaje zarobljen. Ovo je jedinstvena sposobnost LSC metoda za merenja ^{222}Rn u uzorcima vode. Uzorak treba samo što pre pripremiti i meriti što je moguće ranije, ali i kada se meri kasnije dobija se samo rezultat sa većom mernom nesigurnošću. Kod svih ostalih metoda, merenja treba obaviti što pre, posle samog uzorkovanja, jer radon lako može izaći iz plastičnih ili staklenih boca u kojima je uzorak uzet. Čest problem je i samo presipanje uzorka iz boce u kojoj je izvršeno uzorkovanje u mernu bocu jer se i tako gubi deo radona emanacijom iz vode u okolini vazduha.

Tehnika tečne scintilacione detekcije se pokazala kao izuzetno dobra i pogodna za merenje radona u vodi. Minimalna detektibilna aktivnost za sva četiri scintilaciona koktela je veoma niska, manja od 0.1 Bq l^{-1} u 10 ml vode pomešane sa 10 ml scintilaconog koktela. Vreme merenja je 300 minuta i sve MDA vrednosti merene su na $\text{PSA} = 70$ zato što na "blank" uzorak podešavanje PSA parametra nije značajno. Za jednofazni metod sa UGAB scintilacionim koktelom najniža vrednost je dostignuta za 300 minuta mjerjenja, to je slično sa rezultatom za OptiPhase HISafe 3 scintilacioni koktel koji se takođe meša sa vodom (Todorović et al, 2014). vodom .

Evaluacijom oba metoda (jednofazni i dvofazni) spajkovani uzorci (^{226}Ra) su pokazali da se bolji rezultati dobijaju sa uzorcima koji su pripremljeni sa scintilacionim koktelima koji se ne mešaju sa vodom. Najbolje rezultate daje MOS scintilacioni koktel pri vrednostima PSA koje se kreću u intervalu od 30 do 60 (rezultati odstupaju manje od 5% od referentnih vrednosti). Takođe dobre rezultate daje OFO scintilacioni koktel meren na $\text{PSA} = 70$. Koktel UGAB daje rezultate čije vrednosti odstupaju do 10% od referentnih vrednosti na svim PSA vrednostima u

opsegu od 30 do 90. Uzorci su u ovom slučaju zbog svoje netransparentnosti u velikoj meri uticali na prigušenje. Najveću zavisnost CF od PSA pokazao je Mineral Oil Scintillation koktel.

Veoma je bitno podesiti PSA parametre za svaki scintilacioni koktel, mi smo merili sve spajkovane uzorce na drugačijim PSA vrednostima u rasponu od 30-90 sa korakom od 10 i iz dobijenih rezultata lako je zaključiti koja PSA vrednost daje najbolji rezultat za specifični scintilacioni koktel. Npr. za PSA 30 najbolji rezultati su dobijeni za MOS koktele i OFO, a ako podesimo PSA na 70 onda jedino OFO daje dobre rezultate za različite koncentracije aktivnosti. Svi realni uzorci su mereni na PSA 70, to je verovatno i glavni razlog za dobijanje natprosječne koncentracije aktivnosti za uzorce pripremljene sa MOS koktelom. Dobra saglasnost LSC rezultata sa drugim metodama mjerena uočena je kod koktela UGF i OFO.

Mogućnost korišćenja mešavine dva različita scintilaciona koktela je još jedno unapređenje ovog direktnog LSC metoda za merenja ^{222}Rn u vodi. U prospektu (*Perkin Elmer*) o scintilacionim koktelima može se pročitati da je UGF idealni rastvarač za UGAB. Ova mešavina koktela povećava energetsku rezoluciju i mogućnost diskriminacije za uzorce male zapremine. Pravac daljih istraživanja u ovoj oblasti može biti testiranje mešavine scintilacionih koktela koji se ne mešaju sa vodom (dvofazni) i koktela koji se mešaju sa vodom (jednofazni).

Literatura

- Appleton J.D. (2005) Radon in air and water, In: Essentials of Medical Geology: Impacts of the Natural Environment on Public Health. Selinus, O. (ed). Elsevier Amsterdam, 227– 262.
- Bikit I., J. Slivka, M. Vesović, N. Žikić – Todorović, Varga, S. Forkapić, D. Mrđa, J. Hansman, T. Jeftić, (2004/2005) Izveštaj o monitoringu koncentracije radona u zatvorenim prostorijama na teritoriji Vojvodine.
- Bikit, I., Slivka, J., Mrđa, D., Žikić-Todorović, N., Ćurčić, S., Varga, E., . . . Čonkić, L. (2003). Simple Method for depleted uranium determination. *Jpn. J. Appl. Phys* 2003;42:5269-5273.
- Bikit, I., Slivka, J., Vesović, M., Krmar, M., Todorović, N., Mrđa, D., . . . Bikit, K. (2012). Izveštaj o realizaciji projekta-Praćenje radioaktivnosti zemljišta na teritoriji Grada Novog Sada tokom 2012. godine.
- Binesh A., Mowlavi A.A., Mohammadi S. (2012) Estimation of the effective dose from radon ingestion and inhalation in drinking water sources of Mashhad, Iran, Iran. *J. Radiat.Res.*, 10(1): 37–41.
- Currie, L.A. (1968). Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry. *Anal. Chem.* 40, 586-593.
- European Commission (2001) Commission recommendation of 20th December 2001 on the protection of the public against exposure to radon in drinking water, 2001/982/Euratom, L344/85.
- Fleischer R.L. (1997) Radon: Overview of properties, Origin and Transport. In: Durrani SA, Ilic R Radon measurements by etched track detectors. World Scientific, Singapore, 1-21.
- Forkapić S. Istraživanja gasovitih radioaktivnih produkata uranijuma i torijuma. NS. 2013.
- Guogang Jia, Jing Jia,. (2012). Guogang Jia, Jing Jia, Determination of radium isotopes in environmental samples by gamma spectrometry, liquid scintillation counting and alpha spectrometry: a review of analytical methodology, *Journal of Environmental Radioactivity* 106 (2012) 98-119.

- IAEA. (2003), Guidelines for Radioelement Mapping using Gamma Ray Spectrometry Data, Technical Report No. IAEA-TECDOC-1363, International Atomic Energy Agency.
- Ishikawa T, Yamada Y, Fukutsu K, et al. Deposition and clearance for radon progeny in the human respiratory tract. Radiat Prot Dosimetry. 2003a;105(1–4):143–148.
- Jowzaee, S. (2013) Determination of selected natural radionuclide concentration in the southwestern Caspian groundwater using liquid scintillation counting, Radiat. Prot. Dosim. 157(2): 234–241.
- Khursheed A. Doses to systemic tissues from radon gas. Radiat Prot Dosimetry. 2000;88(2):171–181.
- Kitto, M. (1994), Characteristics of liquid scintillation analysis of radon in water, J.Radioanal. Nucl. Chem. 185(1): 91–99.
- Krmar, M. (2013). Uvod u nuklearnu fiziku. Novi Sad: Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno matematički fakultet.
- L'Annunziata M. F. (2012) Handbook of Radioactivity Analysis, Academic Press, 3rd edition.
- Levinson A.A., Coetzee G.L. (1978) Implications of disequilibrium in exploration for uranium ores in the surficial environment using radiometric techniques – a review. Minerals Science and Engineering 10, 19-27.
- Miklavčić I., Radolić V., Vuković B., Poje, M., Varga, M., Stanić, D., Planinić, J. (2008) Radon anomaly in soil gas as an earthquake precursor, Applied radiation and isotopes. 66(10): 1459-1466.
- Mitev K., Dimitrova I., Zhivkova V., Georgiev S., Gerganov G., Pressyanov D., Boshkova T., (2012) Measurement of Rn-222 in water by absorption in polycarbonates and liquid scintillation counting, Nucl Instrum Meth A 677: 31–40
- Pourhabib Z., Binesh A., Arabshahi H. (2011) Evaluation of the Radiation Dose from Radon Ingestion and Inhalation in Water Supplies of Sadatshahr and Javaherdeh in Iran, Environmental Research Journal 5(4): 170–172.
- QUANTULUS™ . (2002). QUANTULUS™ Measuring Extremely Low Levels of Environmental Alpha and Beta Radiation.
- RAD7 Manual“, Durridge Company, USA.

- Rogers, V.C. (1970). Detection limits for gamma-ray spectral analysis. *Anal. Chem.* 42, 807-808.
- Slivka, J., Bikit, I., Vesović, M., & Čonkić, L. (2000). Gama spektrometija, specijalne metode i primene. Novi Sad: Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet.
- Somlai K., Tokonami S., Ishikawa T., Vancsura P., Gaspar M., Jobbagy V., Somlai J., Kovacs T. (2007) ^{222}Rn concentrations of water in the Balaton Highland and in the southern part of Hungary and the assessment of the resulting dose. *Radiat. Meas.* 42: 491– 495.
- Stojković I. (2015), Doktorska disertacija, Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama, Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu.
- Strom, D.J., Stansbury, P.S. (1992). Minimum detectable activity when background is counted longer than the sample. *Health Physics* 63, 360-361.
- Todorović N, Jakonić I, Nikolov J, Hansman J, Vesović M, Establishment of a method for ^{222}Rn determination in water by low-level liquid scintillation counter, *Radiation Protection, Dosimetry*, 1-5. doi:10.1093/rpd/ncu240.
- Todorović N., Nikolov J., Forkapić S., Bikit I., Mrđa D., Krmar M., Vesović M. (2012) Public exposure to radon in drinking water in SERBIA, *Appl Radiat Isot* 70: 543–549.
- UNSCEAR (2006) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Effects of ionizing radiation, Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York.
- UNSCEAR 2008 REPORT, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing Radiation: Sources and Effects, Volume II, United Nations, New York.
- US Environmental Protection Agency (1999) Radon in drinking water health risk reduction and cost analysis. EPA Federal Register 64 (USEPA, Office of Radiation Programs, Washington, DC).
- Wallstrom, M. (2001) Commission Recommendation of 20 December 2001 on the protection of the public against exposure to radon in drinking water supplies. 2001/928/EURATOM (DOCE L 344/85 of 28/12/01, Brussels)
- Water Quality-Radon 222. (2013), Part 2: Test-method using gamma-ray spectrometry, BSI Standards Publication.

- Wilkening M., (1990) Radon in the environment, New Mexico Institute of Mining and Technology, Socorro.
- 913.0, EPA Method. (1991). Determination of radon in drinking water by liquid scintillation counting. Radioanalysis Branch, Nuclear Radiation Assessment Division, Environmental Monitoring Systems Laboratory, U.S. Environmental Protection Agency Las Vegas Nevada 89119.
- (WHO), World Health Organization. (2008), Guideline for Drinking-Water Quality, Third Edition, Vol. 1, Geneva.

Kratka biografija autora

Srđan Vuković je rođen 02.01.1992. godine u Sarajevu. Osnovnu školu „Sveti Sava“ završava u Rogatici, nakon koje u istom mestu završava gimnaziju „27 januar“, opšti smer, obe kao nosilac Vukove diplome. 2011. godine upisuje osnovne studije na Prirodno matematičkom fakultetu Univerziteta u Novom Sadu na Departmanu za fiziku, smer diplomirani profesor fizike. Nakon završene prve godine studija postaje stipendista Fonda „Dr Milan Jelić“, takođe dobija nagradu Univerziteta kao i stipendiju opštine Rogatica za ostvareni uspeh i prosječnu ocenu 10,00. Godine 2015. završava osnovne studije i studije nastavlja na master akademskim studijama nuklearne fizike. Učesnik je naučno – stručnih konferencija i seminara, kao i velikog broja festivala i promocije fizike kao nauke. Autor i koautor je nekoliko naučno-stručnih radova. U tekućoj godini bio je zaposlen u gimnaziji „27 januar“ u Rogatici, na mestu profesor fizike.



UNIVERZITET U NOVOM SADU PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET**KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA**

Redni broj:

RBR

Identifikacioni broj:

IBR

Tip dokumentacije: Monografska dokumentacija

TD

Tip zapisa: Tekstualni štampani materijal

TZ

Vrsta rada: Master rad

VR

Autor: Srđan Vuković

AU

Mentor: doc. dr Jovana Nikolov

MNNaslov rada: Kalibracija tečnog scintilacionog detektora za merenje ^{222}Rn
u vodi**NR**

Jezik publikacije: Srpski (latinica)

JP

Jezik izvoda: Srpski/Engleski

J1

Zemlja publikovanja: Republika Srbija

ZP

Uže geografsko područje: AP Vojvodina

UGP

Godina: 2017.

GO

Izdavač: Autorski reprint

IZ

Mesto i adresa: Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4,

MA Novi Sad

Fizički opis rada: 8 poglavlja/93 strane/29 slika/12 tabela/ 38 referenci

FO

Naučna oblast: Fizika

NO

Naučna disciplina: Nuklearna fizika

ND

Predmetna odrednica/
ključne reči: Radon 222, radioaktivna ravnoteža, tečni scintilacioni brojač,
Quantulus 1220, kalibracija, PSA, MDA, scintilacioni kokteli.

PO**UDK**

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

ČU

Važna napomena: nema

VN

Izvod: U ovom master radu opisan je postupak kalibracije tečnog scintilacionog detektora. Tečni scintilacioni detektor Quantulus 1220TM je kalibriran pomoću četiri različita scintilaciona koktela (monofaznog - Ultima Gold AB i dvofaznih - Mineral Oil Scintilator, Opti Flour O i Ultima Gold F). Za svaki upotrebljeni scintilacioni koktel određena je minimalna detektibilna aktivnost.

IZ U radu je prikazan i postupak podešavanja relevantnih parametara i uticaj različitih parametara na dobijene rezultate. Izvedeni su i opšti zaključci da li je bolje koristiti monofazni ili dvofazni metod.

Na samom kraju kalibracioni postupak je testiran na realnim uzorcima, poređenjem sa rezultatima dobijenim drugim metodom merenja radona u vodi – RAD7 detektorom.

Datum prihvatanja teme od 03.07.2017

NN veća:

DP

Datum odbrane: 30.09.2017.

DO

Članovi komisije:

KO

Predsednik:

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

Član/mentor

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

Član:

dr Milan Pantić, redovni profesor na Departmanu za Fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu

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

UNIVERSITY OF NOVI SAD FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATIC**KEY WORDS DOCUMENTATION**

Accession number:

ANO

Identification number:

INO

Document type: Monograph publication

DT

Type of record: Textual printed material

TR

Content code: Final paper

CC

Autor: Srđan Vuković

AU

Mentor/comentor: Jovana Nikolov, Ph.D, docent

MNTitle: Calibration of liquid scintillation counter for ^{222}Rn in water measurement**TI**

Language of text: Serbian (Latin)

LT

Language of abstract: Serbian/English

LA

Country of publication: Serbia

CP

Locality of publication: Vojvodina

LP

Publication year: 2017

PY

Publisher: Author's reprint

PU

Publication place: Faculty of Science, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

PP

Physical description: 8 chapters/93 pages/29 images/12 tables/38 references

PD

Scientific field: Physics

SF

Scientific discipline: Nuclear physics

SD

Subject/ Key words: Radon 222, secular radioactive equilibrium, liquid scintillation counter, Quantulus 1220, calibration, PSA, MDA, scintillation cocktails.

UDK

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

HD

Note: none

N

Abstract:

AB

In this dissertation are described the process of calibration of a liquid scintillation detector. Liquid scintillation detector Quantulus 1220TM was calibrated using four different scintillation cocktails (monophase - Ultima Gold AB and two phase - Mineral Oil Scintilator, Opti Flour O and Ultima Gold F). A minimum detectable activity was determined for each scintillation cocktail used.

This paper presents the process of setting the relevant parameters and the influence of different parameters on the results obtained. General conclusions were made on whether it is better to use a single-phase or two-phase method.

Finally, the calibration procedure was tested on real samples, compared with the results obtained by other method of measuring radon in water (RAD7).

Accepted by the Scientific Board:

ASB

Defended on: 30.09.2017.

DE

Thesis defend board:

DB

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

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

Member: PhD Milan Pantić, full professor at the Department of Physics, Faculty of Science, University of Novi Sad

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