

Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

Монографија
ЧЕРНОБИЉ
30 година после

Уредник
др Гордана Пантелић

Београд
2016

Монографија: **ЧЕРНОБИЉ 30 година после**

Издавач: Институт за нуклеарне науке „Винча“, Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине „Заштита“
Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

За издавача: др Борислав Грубор

Рецензенти: др Оливера Цирај Бјелац
др Иштван Бикит
др Владимир Удовичић
др Невенка Антовић
др Ивана Вуканац
др Драгослав Никезић
др Душан Мрђа
др Марија Јанковић
др Јелена Крнета Николић

Уредник: др Гордана Пантелић

Лектор/коректор: Мариола Пантелић, MSc

Објављивање монографије помогли:
Министарство просвете, науке и технолошког развоја

ISBN 978-86-7306-138-2

Штампа: Штампарија Института за нуклеарне науке „Винча“, 522,
11001 Београд, Тел. 011-8066-746

Тираж: 150 примерака

ОДРЕЂИВАЊЕ ИЗОТОПА ПЛУТОНИЈУМА У ПРИЗЕМНИМ СЛОЈЕВИМА ВАЗДУХА НА ЛОКАЦИЈИ ВИНЧА-БЕОГРАД У ПЕРИОДУ ЧЕРНОБИЉСКОГ АКЦИДЕНТА

**Ивана ВУКАНАЦ¹, Сузана БОГОЈЕВИЋ², Мирјана ЂУРАШЕВИЋ¹,
Александар КАНДИЋ¹ и Зоран МИЛОШЕВИЋ¹**

- 1) Институт за нуклеарне науке „Винча“, Лабораторија за нуклеарну и плазма физику, Универзитет у Београду, Београд, Винча, vukanac@vinca.rs
- 2) Институт за медицину рада Србије „др Драгомир Карајовић“, Београд, Србија, suzana.bogojevic@karajovic.rs

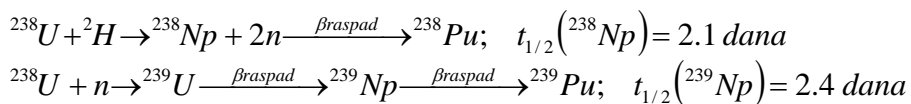
Резиме

Током друге половине двадесетог века у циљу редовног праћења концентрације радионуклида у аеросолима, вршена су узорковања ваздуха на четири места на локацији Института за нуклеарне науке „Винча“. У време узорковања одређивана је укупна бета активност дневних узорака аеросола на филтер папиру. Како је бета спектрометрија/бројање недеструктивна метода исти узорци су касније искоришћени за алфаспектрометријска мерења. У узорцима ваздуха из периода интензивних надземних нуклеарних проба, као и из периода непосредно након чернобиљског акцидента, током 90-тих година двадесетог века у Лабораторији за нуклеарну и плазма физику одређивана је концентрација изотопа плутонијума алфаспектрометријском методом. Узорковање ваздуха вршено је помоћу пумпе са филтерима. Две године након Чернобиља узорци ваздуха прикупљани током маја 1986. године, су прво мерени на полупроводничком HPGe спектрометру и детектовани су следећи вештачки радионуклиди: ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{144}Ce и $^{110\text{m}}\text{Ag}$. Максималне концентрације цезијумових изотопа детектоване су у периоду 02-03. маја, док је други максимум детектован 06. маја. Након гамаспектрометријских, урађена су и алфаспектрометријска мерења. Максималне концентрације ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$ детектоване су у периоду 01-07. маја 1986. године, што одговара хронолошки максимално измереним концентрацијама цезијума. Добијени резултати били су у сагласности са доступним резултатима измереним на локацијама Прага, Минхена и Париза за исти временски период. У узорцима сакупљаним током 1987. и 1989. године, концентрације изотопа плутонијума биле су на граници детекције, осим у пролећном периоду када има највише падавина. Непосредно након чернобиљског акцидента, највећи допринос укупној активности плутонијума у околини потицао је од ^{241}Pu , чистог бета емitera. Мерење овог изотопа може се вршити течним сцинтилационим детектором или масеним спектрометром, који нису били доступни у Институту, те овај радионуклид није ни мерен. Међутим, исти електродепоновани алфа извори плутонијума, припремани почетком деведесетих година прошлог века, поново су мерени алфаспектрометријски током 2004. и 2005. године. Како је од сепарације

плутонијума из узорака ваздуха прошло десетак година, што је поредиво са релативно кратким периодом полураспада ^{241}Pu , створени су услови да се концентрација ^{241}Pu у ваздуху одреди преко његовог потомка - ^{241}Am . Активност насталог америцијума одређивана је на основу измерене активности ^{228}Th , и прорачунатог доприноса потомака трасера ^{236}Pu помоћу Bateman-ових једначина. Добијени односи $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ налазе се у границама цитираним у литератури. Резултати вишегодишњих мерења објављени су у више публикација у међународним часописима, као и у саопштењима на домаћим и међународним конференцијама. У овом раду је дата свеобухватна анализа поступака за припрему узорака, процедура радиохемијске сепарације изотопа плутонијума из узорака ваздуха, технике припреме алфаспектроскопски танких извора, специфичности поступака анализе снимљених спектра, као и анализа добијених резултата за специфичне активности изотопа ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Pu .

1. УВОД

Плутонијум је трансуранички елемент са редним бројем 94. Иако се плутонијум појављује у природи у веома малим количинама, нпр. у руди урана, први пут је откривен 1940/41. године када је синтетисан бомбардовањем ^{238}U деутеријумом на циклотрону (Беркли, Калифорнија). Пошто се плутонијум вештачки производи, његов изотопски састав зависи од начина настанка, а у наставку су дати примери нуклеарних реакција у којима настају изотопи ^{238}Pu и ^{239}Pu [1].



Плутонијум има 23 позната изотопа, маса од 228 до 247 ајм и сви су радиоактивни са временима полураспада од реда секунде до 10^6 година. Основне карактеристике најзначајнијих плутонијумових изотопа, као и ^{241}Am , дате су у табели 1.

Најширу употребу има ^{239}Pu . Захватом спорих неутрона овај изотоп постаје фисибилан па је због тога важан у различитим областима људског деловања, од мирнодопских примена (реакторско гориво, нпр.) до примена у војним индустријама. Следећи по заступљености, ^{240}Pu , формира се двоструким захватом неутрона на ^{238}U . У тзв. "weapon grade" плутонијуму концентрација ^{240}Pu мора бити испод неколико процената, у супротном превише неутрона насталих спонтаним распадом ^{240}Pu ће или покренути преурађену ланчану реакцију или смањити енергетски потенцијал експлозије. Код плутонијума произведеног у сврху производње енергије, са друге стране, очекиван удео ^{240}Pu је око 30%. Ово је важно зато што се управо на основу односа измерених концентрација појединих изотопа у узорцима из околине може одредити порекло детектованог плутонијума.

Као продукт распада ^{241}Pu у произведеном плутонијуму настаје ^{241}Am , чија ће концентрација зависити од времена протеклог од продукције плутонијума, па су стога у табели 1 дати и подаци за ^{241}Am .

Табела 1. Карактеристике најзначајнијих изотопа плутонијума и ^{241}Am [2, 3]

Нуклид	Време полураспада (година)	Главни тип распада са енергијама (MeV)
^{236}Pu	2,858	α (5,721; 5,767)
^{237}Pu	0,124	EC
^{238}Pu	87,74	α (5,456; 5,499)
^{239}Pu	24100	α (5,106; 5,144; 5,157)
^{240}Pu	6561	α (5,124; 5,168)
^{241}Pu	14,33	β^- (0,0208 max)
^{242}Pu	$3,73 \cdot 10^5$	α (4,858; 4,902)
^{241}Am	432,6	α (5,388; 5,443; 5,486) γ (0,0263; 0,0595)

Пре 1944. године, количине плутонијума у природи биле су занемарљиве, међутим од тог времена извесне количине различитих изотопа плутонијума испуштене су у околину током тестирања/употребе нуклеарног наоружања, несавесног одлагања радиоактивног отпада, загађења насталог у раду реактора или у околини постројења за производњу, као и од изолованих акциденталних догађаја, као што су хаварије на реакторским постројењима, свемирским летилицама или подморницама на нуклеарни погон и сл. [4, 5, 6].

Процењено је да је до 1980. укупно у атмосферу ослобођено $7,4 \text{ PBq } ^{239}\text{Pu}$, $4,8 \text{ PBq } ^{240}\text{Pu}$, $0,8 \text{ PBq } ^{238}\text{Pu}$ и $220 \text{ PBq } ^{241}\text{Pu}$ [6]. Такође је процењено да су у периоду пре чернобилског акцидента контаминације биле приближно $0,2\text{--}0,7 \text{ } \mu\text{Bq } ^{239}\text{Pu}$ по кубном метру ваздуха, $0,7 \text{ mBq } ^{239}\text{Pu}$ по граму земљишта и $7,4 \text{ } \mu\text{Bq } ^{239}\text{Pu}$ по литру воде [7]. 1969. г. је типична концентрација ^{239}Pu у ваздуху била од (0,4–18,5) nBq/l . Током 1966. средњи однос $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ у ваздуху је био 0,04, а месечна површинска депозиција ^{239}Pu од преципитације била је од око 0,02 до $0,04 \text{ Bq/m}^2$ [8].

У самом чернобилском акциденту ослобођена је највећа количина активности до данас, у појединачном догађају. Са становишта радиозагађења, овај догађај имао је глобални утицај, а контаминације су могле да се детектују у већини подручја северне хемисфере [5]. На основу садржаја језгра реактора процењене су ослобођене активности, а вредности за изотопе плутонијума су дате у табели 2.

Генерално, плутонијум и његова једињења спадају у веома радиотоксичне материјале - неколико милиграма по килограму ткива сматра се смртоносним. Ниво штетности зависи од облика у којем се плутонијум налази као и од начина изложености/уношења у организам. Наиме, ако се

налази у ваздуху у растворљивом облику инхалацијом се може наћи у плућима и алтернативно наталожити у коштаном сржи. Као растворљиви, плутонијум у води апсорбује се у гастроинтестиналном (ГИ) тракту и опет се највише гомила у коштаном сржи. Када се плутонијум налази у нерастворној форми, критични органи су, уз оне директно изложене, плућа и ГИ тракт. У случају нерастворног плутонијума у ваздуху, дејство плутонијума лимитирано је дозом предатом плућним лимфним чворовима [8].

Табела 2. Процена ослобођене активности током чернобиљског акцидента [9]

	Садржај језгра реактора на дан 26. 04. 1986. г.	Укупна ослобођена активност током акцидента
Нуклид	Активност [PBq]	Активност [PBq]
²³⁸ Pu	1	0,03
²³⁹ Pu	0,85	0,03
²⁴⁰ Pu	102	0,042
²⁴¹ Pu	170	~ 6

На локацији Института „Винча“ вршено је систематско узорковање ваздуха у циљу одређивања концентрације аеросола у периоду проба нуклеарног наоружања и локалних акциденталних ситуација. У склопу рутинске контроле 2. маја 1986. примећени су први показатељи повећане активности ваздуха након чернобиљског акцидента на локацији Института. Рутинска контрола ваздуха интензивирана је у том периоду, а прикупљени узорци су касније искоришћени за одређивање изотопа плутонијума у ваздуху у поменути периодима. У овом раду дате су концентрације изотопа плутонијума измерене алфаспектрометријски у Лабораторији за нуклеарну и плазма физику, Института за нуклеарне науке „Винча“.

2. ПОЛУПРОВОДНИЧКА АЛФА СПЕКТРОМЕТРИЈА

Полупроводничка алфа спектрометрија се користи за квалитативну и квантитативну анализу алфа емитера и представља врло прецизну и осетљиву технику мерења узорака из животне средине и идентификацију природних (изотопи U, Th и њихових потомака) и вештачких (изотопи Pu, Cm, Am) алфа радионуклида. Поступак одређивања ових радионуклида у узорцима из животне средине састоји се из више фаза:

- узорковање и складиштење
- пре-третман – растварање узорка, тзв. “личинг”
- радиохемијска обрада – сепарација
- припрема спектрометријски танких хомогених извора
- мерење
- обрада резултата мерења.

Прикупљање и складиштење узорака врши се према препорукама датим од стране Међународне агенције за атомску енергију [10]. Тип процедуре узорковања зависи од типа истраживања, односно од природе узорка. Како су у овом раду дати резултати мерења концентрација плутонијума у ваздуху, детаљно ће бити описана процедура његовог узорковања.

Начин узорковања ваздуха зависи од тога да ли се испитују гасовити радионуклиди или активне честице аеросола. За сакупљање ситних честица суспендованих у ваздуху, најчешће се користе филтери кроз које се пропушта ваздух. Која ће се врста користити зависи од потреба анализе, а избор се врши на основу ефикасности задржавања, селективности у односу на величину честица, као и даље радиохемијске обраде филтера.

Пре-третман се изводи додавањем хемијског трасера и припремом узорка за даљу хемијску процедуру – разарање, чиме се одстрањују органска једињења од којих је филтер начињен. Разарање филтера врши се спаљивањем, а добијени pepeo се раствара како би се испитивани радионуклиди довели у растворни облик.

Узорку је пре процеса разарања потребно додати познату количину (активност) обележивача – трасера како би он прошао кроз све фазе анализе као и испитивани радионуклиди укључујући и радиоизотопску измену. Трасер је изотоп елемента чија се активност одређује у узорку, а који се не налази у самом узорку. На основу измерене активности трасера и познате активности додате у узорак одређује се радиохемијски принос – ефикасност целокупног радиохемијског процеса, а простим поређењем површина испод пика трасера и мереног изотопа – његова активност у узорку.

При одређивању садржаја плутонијума у узорцима из околине као трасери се користе ^{236}Pu или ^{242}Pu . Дуже време полураспада ^{242}Pu представља предност над релативно краткоживећим ^{236}Pu ($T_{1/2} = 2.851 \text{ god}$) [11]. Из истог разлога је неопходно вршити континуалне корекције на распад ^{236}Pu . Осим тога, продукти распада ^{236}Pu умногоме компликују спектралну анализу. У случају коришћења ^{236}Pu трасера који није непосредно пре радиохемијске процедуре прављења извора пречишћен, јављају се преклапања пикова, и неопходно је у снимљеном спектру извршити деконволуцију доприноса ^{224}Ra у области ^{236}Pu , ^{232}U и ^{228}Th при одређивању урана и торијума. ^{210}Po такође, ако је присутан, интерферира левом страном-репом, са пиком $^{239}, ^{240}\text{Pu}$.

Радиохемијска процедура углавном подразумева сепарацију појединих елемената - алфа емитера из почетног узорка на јоноизмењивачким колонама, и специфична је за сваки од њих [10]. Велики број различитих радиохемијских метода користи се при одређивању ниских концентрација природних радионуклида, трансурана и фисионих продуката у узорцима из животне средине. Радиохемијска процедура обухвата копреципитацију, јонску измену и добијање течне фракције. Након сепарације свака фракција преводи се преципитацијом или електродепозицијом у форму погодну за мерење. Тада се приступа мерењима на пропорционалном гасном бројачу, течном сцинтилатору, алфа или гама спектрометру.

Припрема алфа извора је најосетљивији корак у радиохемијској анализи узорака. Извори морају бити спектроскопски танки, хомогени и униформни на целој површини. Због велике апсорпције алфа зрачења у материјалу

извора, за квалитетна алфа спектрометријска мерења потребно је да површинска маса извора не прелази неколико $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ [12]. Од великог је значаја минимизирање дебљине извора у циљу смањења самоапсорпције алфа честица у самом извору, као и због побољшања квалитета снимљених спектра, резолуције на првом месту.

Најчешће коришћене методе за прављење танких алфаспектрометријских извора су електродепозиција из воденог или органског раствора и копреципитација на хидроксидима или флуоридима.

Електродепозиција из органског раствора подразумева пролазак мале струје на високом напону кроз раствор. Релативно брзо, (~ 1 h) долази до скоро квантитативног преноса присутних актинида на носач извора.

Електродепоновање из воденог раствора се врши на напону од 12 до 20 V, са струјама од неколико стотина mA/cm^2 . Овом методом могу се из чистог раствора актинида постићи квантитативни (100%) приноси. Процес траје и по неколико сати, до потпуне депозиције. Узорак се депонује најчешће на плочицу од нерђајућег челика која представља катоду у ћелији. Анода је најчешће платинаста жица. Након електродепоновања уобичајен поступак је жарење плочице-носача извора у циљу одстрањивања молекула воде везаних за једињење актинида и превођења у оксидно стање. Осим тога, на високој температури доћи ће до испаравања нежељено депонованих волатилних компонената, нпр. полонијума. Овим се спречава евентуална контаминација детектора. Мерењем овако добијених извора постиже се резолуција алфа спектрометра мања од 50 keV.

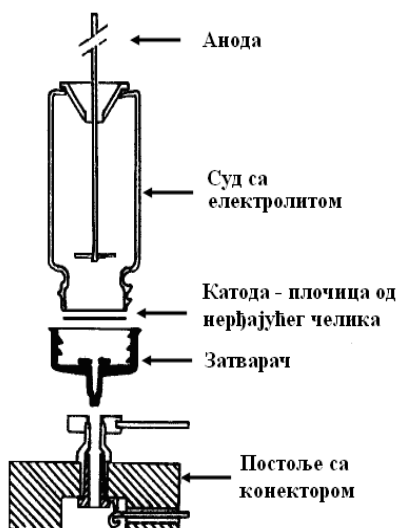
У Лабораторији за нуклеарну и плазма физику развијен је поступак електродепоновања по методи Talvitie [13]. Овај поступак се примењује за добијање танких хомогених извора за калибрацију алфа спектрометра као и за одређивање урана и трансурана после сепарације из узорака из околине.

Ћелија за електродепозицију је домаће израде (Слика 1), анода је платинска жица пречника 0,6 mm, на крају завијена у спиралу пречника око 13 mm. Катода, носач извора је плочица од нерђајућег челика (Слика 2). Растојање између електрода је око 5 mm. Електролиза се врши при протоку струје од 1,2 A током 1 h.

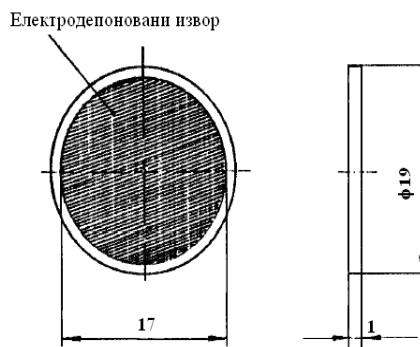
Овако припремљен извор мери се на полупроводничком детектору са површинском баријером који се и најчешће користе у алфа спектрометрији. Разлог за то је добра резолуција (< 20 keV), мали фон, ниска осетљивост на гама зрачење (0,6 imp/h за енергетски интервал од 3 MeV до 8 MeV) и ниска цена. На резолуцију спектрометра утиче величина површине детектора, квалитет постигнутог вакуума у комори у коју су смештени детектор и извор који се анализира, дебљина и хомогеност извора, док је ефикасност константна у целом енергетском опсегу.

Након мерења следи анализа спектра, која у већини случајева подразумева сложен поступак раздвајања пикова и прорачун активности потомака изотопа сепарисаног елемента. Алфа пикови имају несиметричан облик, а проблем фитовања репа са леве стране, као и одузимање његовог доприноса пиковима на мањим енергијама, који су на мање од три резолуције удаљени, проблем је који нема једнозначно и на све случајеве примењиво решење. При анализи спектра обично се користе тзв. „user-defined“ библиотеке у

комерцијално доступним програмима, али је њихова употреба ограничена потребном статистиком [9].



Слика 1. Апаратура за електродепозицију



Слика 2. Електродеповани извор

3. МЕРЕЊА КОНЦЕНТРАЦИЈЕ ПЛУТОНИЈУМА У ВАЗДУХУ У ПЕРИОДУ ПРЕ ЧЕРНОБИЉСКОГ АКЦИДЕНТА

На локацији Института „Винча“ (20°30' географске ширине и 44°50' географске дужине) вршено је систематско узорковање ваздуха у циљу одређивања концентрација аеросола од 1960. год. Све до 1975. године ваздух је узоркован на дневном нивоу са четири контролне тачке у Институту и у околини, и одређивана је укупна бета активност аеросола у дневним узорцима [14]. Како је бета спектрометрија/бројање недеструктивна метода исти узорци су касније (половином осамдесетих година прошлог века) искоришћени за поставку методе и алфаспектрометријско одређивање изотопа плутонијума у ваздуху у периоду интензивних надземних нуклеарних проба и локалних акциденталних догађаја.

Узорковање ваздуха вршено је помоћу пумпи са филтерима, током 24 часа. Ефективна запремина колектованог ваздуха рачуната је на основу познате брзине протока ваздуха, брзине кретања филтера и времена колектовања. Ефикасност филтера, односно ефикасност прикупљања аеросола била је 70%, а узорковано је просечно 630 m³ ваздуха по једном дану. За одређивање плутонијума коришћени су месечни и тромесечни узорци, који су одговарали прикупљеном ваздуху од око 16000 m³ и 47000 m³, респективно. Радиохемијска процедура за одређивање плутонијума у овим узорцима је

укључивала термалну минерализацију филтера, личинг плутонијума азотном и хлороводоничном киселином, сепарацију на колони, електродепозицију на плочицама од нерђајућег челика и алфаспектрометријска мерења. На Слици 3 је приказана шема процедуре.

У сваки од узорака додавано је 1 ml (80 mBq) трасера, стандардног раствора ^{236}Pu , Harwell Laboratory UKAEA. Средњи радиохемијски принос био је од 50% до 70%. Све коришћене хемикалије биле су аналитичке чистоће. Провера евентуалне контаминаности коришћених хемикалија као и лабораторијске опреме извршена је прављењем тзв. бленк извора.

Алфаспектрометријски извори, електродепоновани по методи Talvite [13] мерени су силицијумским детектором са површинском баријером (ORTEC P-200-24-300M) смештеним у вакуумску комору (CANBERRA 7400A) са пратећом електроником: претпојачавач-2004, појачавач-2012, 40MCA. Параметри мерног система су били: вакуум – 10^{-2} mbar, FWHM – 24 keV за ^{241}Am , фон 0,01 imp/min у енергетском опсегу $^{239,240}\text{Pu}$, MCA енергетска скала 4 keV/каналу, ефикасност детекције 12% за електродепоновани извор дијаметра 20 mm, MDA – 15 mBq за време мерења 24 h.

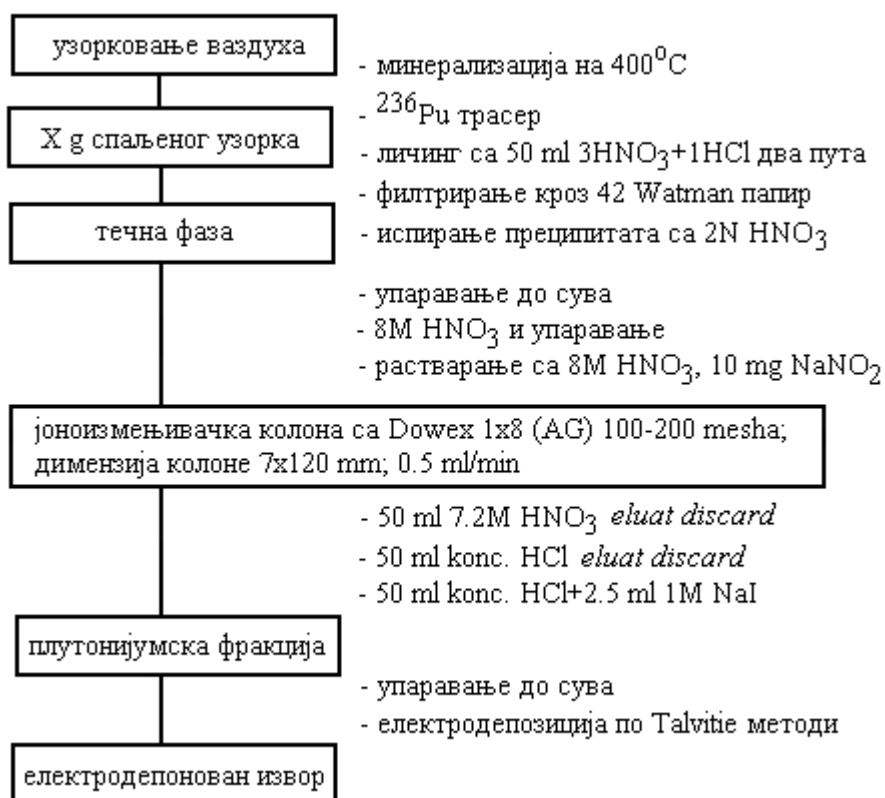
У снимљеним спектрима детектоване су линије ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ и трасера ^{236}Pu . Примери снимљених спектра дати су на Слици 4 и представљају само илустрацију односа пикова ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ и количине додатог трасера ^{236}Pu у мереним изворима плутонијума различитог порекла. У табели 3 приказане су измерене концентрације плутонијумових изотопа у узоркованом ваздуху.

Добијени резултати били су сагласни са оним већ измереним на истој географској ширини. Повећана концентрација ^{238}Pu током 1967. год., такође је сагласна са подацима из литературе [14]. Највећи пораст концентрације ^{238}Pu у ваздуху у овом периоду приписује се експлозији сателита SNAP-9A у априлу 1964. год. [5].

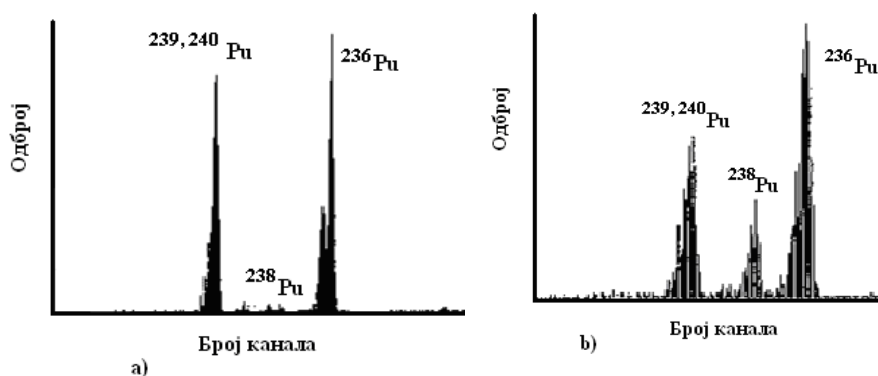
4. МЕРЕЊА КОНЦЕНТРАЦИЈЕ ПЛУТОНИЈУМА У ВАЗДУХУ У ПЕРИОДУ ЧЕРНОБИЉСКОГ АКЦИДЕНТА

У склопу рутинске контроле 2. маја 1986. примећени су први показатељи повећане радиоактивности ваздуха након чернобиљског акцидента на локацији Института. Контаминација пропорционалног бројача на коме су мерени филтери указивала је на повећану концентрацију јода у ваздуху. То је потврђено гамаспектроскопским мерењима. Рутинска контрола ваздуха интензивирана је у том периоду да би се тачно пратиле промене контаминације ваздуха радионуклидима, аеросолима.

За сакупљање узорака аеросола коришћена је апаратура домаће израде која се састоји од пумпе, држача филтера и мерача протока ваздуха. За депоновање аеросола коришћени су филтери WH 41 Мерск, дијаметра 130 mm. Филтери су спаљивани у пећи са терморегулацијом на 450 ± 1 °C (Instrumentarija, Zagreb). Експериментално одређена ефикасност задржавања аеросола на филтеру била је 80%. Брзина протока ваздуха била је ≈ 20 m³/h, а просечна дневна количина узоркованог ваздуха износила је око 630 m³.



Слика 3. Процедура сепарације плутонијума [14]



Слика 4. Алфа спектри плутонијумских извора добијених из ваздушних филтера са додатим ²³⁶Pu трасером: а) мај 1965, б) IV квартал 1967

Табела 3. Концентрација $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu у ваздуху у Винчи.
Грешке су дате на нивоу поверења 95% [14]

Год.	Месец	$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$	
		$^{239,240}\text{Pu}$	^{238}Pu
1965	Март	$13,1 \pm 1,3$	$\sim 0,5$
	Април	$9,7 \pm 1,3$	n,d,
	Април	$7,6 \pm 0,6$	$\sim 0,2$
	Мај	$16,7 \pm 1,1$	n.d.
1967	Јул	$2,1 \pm 0,3$	$1,0 \pm 0,2$
	Август	$1,6 \pm 0,35$	$0,9 \pm 0,36$
	Октобар	$0,74 \pm 0,23$	$\sim 0,3$
	Октобар	$0,83 \pm 0,69$	$\sim 0,4$
	Новембар	$\sim 0,3$	$\sim 0,1$
	Новембар	$\sim 0,4$	$\sim 0,2$
	Децембар	$0,5 \pm 0,3$	$\sim 0,3$
	I квартал	$\sim 1,5$	n.d.
	II квартал	$2,9 \pm 0,6$	$1,0 \pm 0,14$
	III квартал	$2,2 \pm 0,3$	$1,1 \pm 0,16$
1969	IV квартал	$1,5 \pm 0,35$	$0,7 \pm 0,37$
	II квартал	$1,5 \pm 0,35$	$0,6 \pm 0,36$
	IV квартал	$0,8 \pm 0,23$	$\sim 0,1$

Две године након Чернобиља, филтери су прво мерени на гамаспектрометријском систему који се састојао од 85 cm^3 HPGe детектора (ENERTEC EGPC 1221) и стандардне електронике. Релативна ефикасност детектора била је 15%, резолуција $2,1 \text{ keV}$ на 1332 keV , док је пик-Комптон однос био 39:1. Дебљина оловне заштите била је 10 см. Енергетска калибрација извршена је помоћу сета стандардних тачкастих извора. Калибрациони стандарди направљени су накапавањем $50 \mu\text{l}$ стандардног раствора ^{137}Cs на филтере за ваздух. Контаминирани филтери сушени су на собној температури и мерени су у танким пластичним кесицама, да би се спречила евентуална контаминација мерног система.

У узорцима ваздуха прикупљеним од 1. до 23. маја 1986, детектовани су следећи радионуклиди: ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{144}Ce и $^{110\text{m}}\text{Ag}$ [15]. Максималне концентрације ^{137}Cs и ^{134}Cs измерене су у узорцима прикупљеним у периоду 2-3. мај. Други максимум детектован је 6. маја, што је било повезано са емисијом са места акцидента, као и струјањима ваздуха изнад Европе [5, 15].

Након чернобиљског акцидента добијен је и објављен велики број резултата мерења гама и бета емитера. Међутим, мали број измерених концентрација

плутонијума у ваздуху могао се наћи у литератури. Алфаспектроскопска мерења узорака аеросола колектованих непосредно након чернобиљског акцидента извршена су почетком деведесетих година [16]. Одређене су концентрације ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$ у ваздуху у Винчи.

Аналитичка процедура сепарације плутонијумових изотопа из узорака ваздуха укључивала је термалну минерализацију аеросолних филтера, фузију са амонијум хидроген сулфатом у циљу растварања нерастворљивих оксида плутонијума, копреципитацију плутонијума на Fe(III) хидроксиду и сепарацију на колони (Dowex 1-X8, hloridna forma, 100-200 mesha).

Радиохемијско издвајање плутонијума

Радиохемијско издвајање подразумева разарање узорка и раздвајање изотопа на јоноизмењивачкој смоли. После спаљивања филтер папира на којима су сакупљени дневни узорци аеросола, у пећи на $450\text{ }^\circ\text{C}$, добијени су узорци који одговарају количинама од 576 до 663 m^3 ваздуха. Сваком узорку је, због одређивања укупног радихемијског приноса, после спаљивања додато приближно $100\text{ }\mu\text{l}$ ($0,1\text{ Bq}$) разблаженог раствора трасера ^{236}Pu , чије су алфа енергије довољно одвојене од алфа енергија његових потомака и ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$. Анализа спектра раствора трасера, показала је да осим потомака ^{236}Pu у траговима (^{232}U и ^{228}Th), нема других контамината. На основу периода полураспада може се израчунати пораст активности ^{232}U (72 год.) у односу на активност ^{236}Pu (2,851 год.) од око 0,08% по месецу и ^{228}Th (1,91 год.) од око 0,002% месечно. Коришћењем свежег раствора трасера, ова непогодност ^{236}Pu може се избећи. Са друге стране, U и Th се одвајају од Pu у процесу сепарације, па је, ако се мерење врши непосредно након издвајања, присуство U и Th занемарљиво.

Због очекивања да се плутонијум у узорцима из периода Чернобиља налази у тешко растворном облику (температура језгра је била од 1000 до $2800\text{ }^\circ\text{C}$), за растварање PuO_2 коришћен је поступак топљења са NH_4HSO_4 , који је увео Yamamoto [16], и који даје добре резултате и при растварању тешко растворних металних оксида (титанијума, цирконијума и ниобијума). Поступак се састоји од загревања пепела филтера са NH_4HSO_4 у односу 2:(10-15) у Клејдаловом стакленом балону, на Бунзеновом пламенику. Охлађени растоп се раствори у 50 ml разблажене H_2SO_4 (1:1) и филтрира. У филтрат се додаје амонијак у капима, при чему присутно гвожђе образује Fe(III) -хидроксид који копреципитира јоне плутонијума. После филтрирања талог се раствара у 50 ml 8N HNO_3 где се врши превођење присутних Pu јона у IV-валентно стање помоћу NaNO_2 (10 mg). У 8N HNO_3 Pu(IV) гради анјонски комплекс $[\text{Pu}(\text{NO}_3)_6]^{2-}$.

Трасер ^{236}Pu додат је у узорке након термалне минерализације. Елуент је електродепонован на плочице од нерђајућег челика (као на Слици 1 и 2). Коришћене хемикалије биле су аналитичке чистоће, а њихов списак, као и детаљне процедуре раздвајања изотопа U, Th, Fe и других елемената од плутонијума детаљно су дати у референцама [5, 9, 10].

Због евентуалне могућности да посуђе и хемикалије буду контаминирани траговима алфа радионуклида и да се тиме унесе контаминација у току

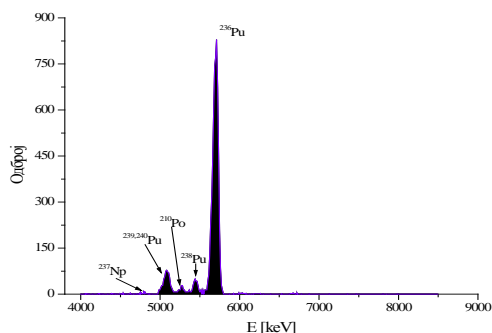
анализе, припремани су бланко узорци на исти начин као и узорци ваздуха, али без додавања трасера.

Добијени спектроскопски танки извори мерени су на силицијумском детектору са површинском баријером (ORTEC 676A). Времена мерења су била око пет дана. Пример измереног алфа спектра приказан је на Слици 5.

У спектру су идентификоване линије плутонијумових изотопа сепарисаних из узорка ваздуха, као и додатог трасера. Додатно, детектован је и пик ^{210}Po - природног алфа емитера. Присуство ^{237}Np последица је примењене радиохемијске процедуре. Мерења су вршена у периоду 1991-1992. године. Измерене дневне концентрације плутонијумових изотопа алфа емитера у узоцима ваздуха дате су у табели 4.

Максималне концентрације $^{239, 240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu детектоване су у периоду од 1. до 7. маја, што одговара хронолошки максималним измереним концентрацијама изотопа цезијума [15]. Добијени резултати упоредиви су са оним добијеним за локације Прага, Минхена и Париза, за исти временски период. Добијени резултати указују на одређену корелацију количине падавина са концентрацијама [5].

Током 1987. и 1989. године такође су мерени плутонијумови изотопи у узорцима ваздуха. Концентрације су биле на граници детекције, а $^{239, 240}\text{Pu}$ је детектован само у пролећном периоду када има највише падавина. Концентрације плутонијумових изотопа у композитним узорцима ваздуха, дате су у табели 5.



Слика 5. Алфа спектар плутонијумових изотопа сепарисаних из узорка ваздуха од 5. маја 1986, мерено 27. јануара 1992, време мерења 250000 s

Односи активности $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ дати у табели 4 мало су већи од оних који се могу наћи у литератури [17-19].

^{238}Pu емитује алфа енергију од 5,5 MeV. ^{241}Am који је продукт распада ^{241}Pu , чистог бета емитера, има линију на 5,48 MeV. Међутим, како су извори мерени непосредно након сепарације плутонијума и електродепоновања, сматра се да линија од 5,5 MeV потиче само од ^{238}Pu . Са друге стране, пораст односа може се објаснити као последица пораста концентрације ^{238}Pu на филтерима услед распада ^{242}Cm ($T_{1/2} = 162,8$ dana), јер је од узорковања ваздуха до сепарације плутонијума прошло 4,5 године.

Табела 4. Измерене концентрације плутонијумових изотопа.
Стандардна статистичка несигурност је 10 % [16]

Датум, мај 1986.	Концентрација [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]		$^{238}\text{Pu} / ^{239, 240}\text{Pu}$
	$^{239, 240}\text{Pu}$	^{238}Pu	
01	0,9	0,52	0,578
01-02	4,9	3,6	0,735
03	10,2	5,4	0,529
04	4,3	3,8	0,884
05	10,6	5,7	0,538
06	6,7	5,5	0,821
07	4,7	4,2	0,894
08	2,8	2,4	0,857
09	3,5	2,8	0,800
10	1,8	1,4	0,778
11	0,4	0,3	0,868
12	2,9	2,8	0,966
13	3,6	1,9	0,528
14	6,0	3,6	0,600
15	5,2	3,9	0,754

Табела 5. Измерене концентрације плутонијумових изотопа у композитним узорцима ваздуха [16]

Квартал 1987.	Концентрација $^{239, 240}\text{Pu}$ [nBq/m^3]	Квартал 1989.	Концентрација $^{239, 240}\text{Pu}$ [nBq/m^3]
I	n.d.	I	20 ± 14
II	226 ± 52	II	n.d.
III	n.d.	III	13 ± 5
IV	n.d.	IV	-

5. ОДРЕЂИВАЊЕ ^{241}Pu АЛФА СПЕКТРОМЕТРИЈОМ ^{241}Am

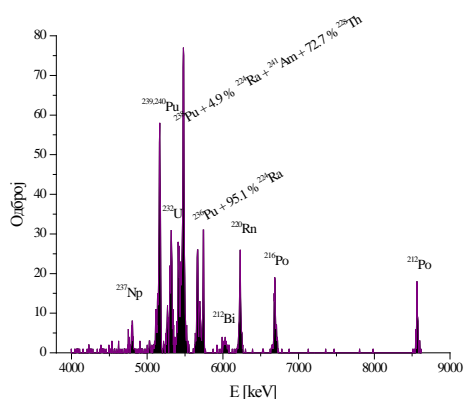
Мерење плутонијума у узорцима из животне средине углавном је базирано на алфаспектрометријским испитивања и одређивањима концентрација ^{238}Pu и $^{239, 240}\text{Pu}$ – чистих алфа емитера. Међутим, непосредно након чернобиљског акцидента највећи допринос укупној активности плутонијума потицао је од ^{241}Pu , чистог бета емитера. Мерење овог изотопа плутонијума може се

извршити течним сцинтилационим детекторима, калибрисаним стандардом трицијума, или масеном спектрометријом.

Како нису постојале могућности за одређивање активности ^{241}Pu у ваздуху, тај изотоп није ни мерен. Међутим, пошто је од сепарације плутонијума из узорака ваздуха прошло извесно време, створени су услови да се на основу продукта распада ^{241}Pu , ^{241}Am , одреди његова концентрација у ваздуху. Током 2005. године поново су мерени извори електродепоновани почетком деведесетих и на основу измерене алфа активности америцијума одређена је активност ^{241}Pu у узорцима ваздуха прикупљеним током прве половине маја 1986. на локацији Института. Коришћена је метода у литератури позната као „ ^{241}Am ingrowth method” [11]. Измерени алфа спектри веома су комплексни у енергетској области америцијума, што је последица присуства ^{238}Pu и потомака ^{236}Pu (који је коришћен као трасер), ^{232}U и ^{228}Th .

Активност насталог ^{241}Am одређивана је на основу измерене активности ^{228}Th и његових потомака који се налазе у секуларном еквилибријуму (^{224}Ra , ^{220}Rn , ^{216}Po и ^{212}Po). Алфа пикови ових радионуклида добро су дефинисани и сепарисани у измереним спектрима. Активности и доприноси потомака ^{236}Pu у спектру рачунати су и на основу примене Vatemан-ових једначина. У оба случаја допринос ^{238}Pu пика, пику ^{241}Am процењен је на основу раније мереног односа активности $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ и измерене активности $^{239,240}\text{Pu}$.

Узорци су припремани од децембра 1991. до фебруара 1992. године. Први пут су мерени непосредно након сепарације плутонијумске фракције и електродепоновања. Један од измерених спектра принаказан је на Слици 5. Исти узорак је мерен након 12,9 година, односно 4,6 периода полураспада ^{236}Pu (2,851 год.), и спектар је приказан на Слици 6.



Слика 6. Алфа спектар плутонијумског извора добијеног из узорака ваздуха прикупљених 5. маја 1986. и мереног 10. октобра 2004 ($t = 5.3 \times 10^5 \text{ s}$).

Мерења су извршена на Canberra 7401 алфа спектрометру, са силицијумским полупроводничким детектором са површинском баријером резолуције 21 keV и површине 300 mm^2 , и Ortec MCA. Енергетска и калибрација ефикасности извршена је са стандардним алфаспектрометријским извором $^{239,240}\text{Pu}$. Геометријска ефикасност била је 15,29 %.

Као што се види са Сlike 6, спектар је веома комплексан. Детектовани су пикови плутонијумових изотопа као и пикови потомака ^{236}Pu . ^{237}Np је такође детектован.

На основу једначина распада ^{241}Pu и ^{241}Am изведена је релација помоћу које је одређивана активност ^{241}Pu [9, 11]:

$$\frac{a_1(0)}{a_{\text{Pu}239}} = \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{\lambda_2} \frac{1}{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_1 t}} \frac{N_2}{N_{\text{Pu}239}}, \quad (1)$$

где су: $a_1(0)$ активност ^{241}Pu у моменту депоновања,
 $a_{\text{Pu}239}$ активност $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ одређена је из снимљених спектра по

$$\text{релацији } a_{\text{Pu}239} = \frac{N_{\text{Pu}239}}{\varepsilon \Delta t}, \quad (\varepsilon - \text{ефикасност детекције и } \Delta t - \text{време}$$

мерања)

λ_1 и λ_2 константе распада, ^{241}Pu и ^{241}Am , респективно

N_2 одброј у спектру који потиче од ^{241}Am

$N_{\text{Pu}239}$ укупна површина испод пика $^{239}, ^{240}\text{Pu}$

Резултат добијен помоћу претходне формуле мора се кориговати на дан колекције узорка ваздуха. Како се активност $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ за временски интервал од 13 година промени за мање од 0,05%, та корекција се може занемарити.

Како мерени извори садрже трасер ^{236}Pu , његови потомци усложњавају умногоме анализу снимљених спектра, јер неки од њих имају енергије алфа зрачења у области ^{241}Am . Зато је процена активности, односно одброја који у спектру потиче од ^{241}Am , из измерених спектра веома сложена. Наиме, у енергетској области америцијума (5,4 MeV до 5,55 MeV) детектују се следећи алфа пикови: ^{224}Ra (5,449 MeV, принос 4,9%), ^{228}Th (5,423 MeV, 72,7%), ^{238}Pu (5,465 MeV, 29,3% и 5,499 MeV, 71,6%) и ^{241}Am (5,443 MeV, 12,8% и 5,486 MeV, 85,2%). ^{224}Ra и ^{228}Th су потомци ^{236}Pu . У енергетском опсегу од 5,6 MeV до 5,8 MeV детектовани су пикови ^{224}Ra (5,685 MeV, 95,1%) и ^{236}Pu . На Слици 7 су приказани ови енергетски опсежи.

Да би проценили доприносе ^{224}Ra и ^{228}Th у енергетском опсегу ^{241}Am и ^{238}Pu , рачуната је активност ^{224}Ra на основу пика на енергији 5,685 MeV. Претходно је морало бити извршено његово разлагање од пикова ^{236}Pu са којима се делимично преклапа, што се види на Слици 7. При разлагању ових пикова лева страна пика ^{236}Pu фитована је гаусијаном. Како су ^{228}Th и ^{224}Ra , продукти распада ^{236}Pu , у равнотежи, њихове су активности једнаке. Ови прорачуни потврђени су, у границама статистичких грешака, активностима добијеним преко добро дефинисаних пикова ^{220}Rn , ^{216}Po и ^{212}Po .

Са спектра приказаног на Слици 6 добија се одброј од 731 у енергетском интервалу од 5,4 MeV до 5,55 MeV. Допринос том броју импулса од ^{238}Pu , рачунат је преко претходно измерених односа активности $^{238}\text{Pu}/^{239}, ^{240}\text{Pu}$ [15] и износи 181. Активност ^{228}Th рачуната је преко ^{224}Ra и допринос овог радионуклида укупном одброју био је 104. Допринос линије ^{224}Ra од 5,449 MeV био је 7. Сума ових вредности и фон одузети су од укупног одброја у

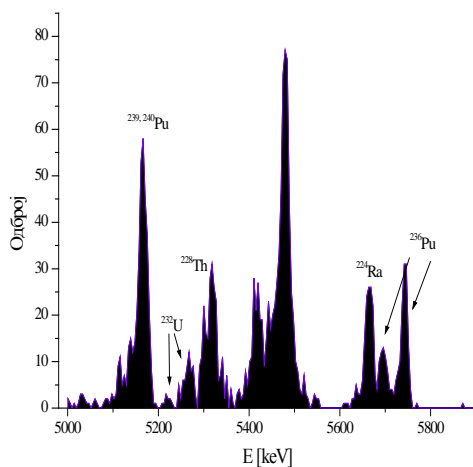
овом енергетском интервалу и добијена је активност награђеног ^{241}Am у извору:

$$a(^{241}\text{Am}) = \frac{N_{tot} - N(^{228}\text{Th}) - N(^{224}\text{Ra}) - N(^{238}\text{Pu}) - B}{\varepsilon \cdot \Delta t}, \quad (2)$$

где су: N_{tot} укупан одброј у енергетској области од 5,4 MeV до 5,55 MeV,
 $N(^{228}\text{Th})$, $N(^{224}\text{Ra})$ и $N(^{238}\text{Pu})$ су доприноси ових радионуклида у посматраном енергетском опсегу,
 ε тотална ефикасност детекције,
 Δt време мерења и
 B фон.

У овом узорку активност ^{241}Am била је 5,4 mBq. Једноставне једначине радиоактивног распада дају вредност од 452 mBq ^{241}Pu у узорку, односно 1474,36 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ваздуха за 05. мај 1986. године. Однос $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ у овом узорку био је 95. Иста процедура спроведена је и на другим поново мереним изворима и добијене активности, које су у границама цитираним у литератури [20], дате су у табели 6.

Да би проверили и потврдили резултате добијене из спектара, развијен је једноставан алгоритам заснован на Ватман-овим једначинама за рачунање активности ^{241}Am награђеног у узорку. За овај прорачун улазни подаци су активност трасера ^{236}Pu и „gross“ површина у енергетском опсегу ^{241}Am и ^{238}Pu , од 5,4 MeV до 5,55 MeV. Добијени резултати са грешкама дати су у табели 7.



Слика 7. Алфа спектар Pu извора добијеног из узорака ваздуха од 5. маја 1986. и мереног 10. октобра 2004. ($t = 5,3 \times 10^5$ s). Енергетски опсег од 5,4 MeV до 5,55 MeV садржи пикове ^{228}Th (72,7%), ^{224}Ra (4,9%), ^{238}Pu , ^{241}Am

Табела 6. Резултати добијени спектралном анализом поново мерених узорка;
грешке су дате на нивоу поверења од 95%

Датум узорковања	Активност ^{241}Am [mBq]	Активност $^{241}\text{Pu}^*$ [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	Активност $^{239,240}\text{Pu}$ [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}^*$
01-02. мај 1986.	$5,2 \pm 0,9$	1662 ± 57	$12,2 \pm 1,5$	137
03. мај 1986.	$10,5 \pm 1,4$	3461 ± 91	$38,5 \pm 3,1$	90
04. мај 1986.	$2,3 \pm 0,7$	7775 ± 43	$69,3 \pm 14,9$	112
05. мај 1986.	$5,4 \pm 0,9$	1474 ± 56	$15,6 \pm 1,6$	95
12. мај 1986.	$1,3 \pm 0,7$	360 ± 45	$5,0 \pm 1,0$	72

(*на датум узорковања)

Табела 7. Резултати добијени применом Bateman-ових једначина;
грешке су дате на нивоу поверења од 95%

Датум узорковања	Активност ^{241}Am [mBq]	Активност $^{241}\text{Pu}^*$ [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}^*$
01-02. мај 1986.	$5,5 \pm 0,9$	1771 ± 60	145
03. мај 1986.	$11,4 \pm 1,7$	3774 ± 106	98
04. мај 1986.	$2,3 \pm 1,5$	7803 ± 97	113
05. мај 1986.	$5,3 \pm 0,8$	1473 ± 54	95
12. мај 1986.	$0,9 \pm 0,2$	232 ± 12	47

(*на датум узорковања)

Наведене несигурности резултата мерења добијене су применом општег закона пропагације несигурности. Вредност мерне несигурности (реда 20%) у највећој мери је одређена малом статистиком, односно малом вредности одброја у алфа пиковима.

6. ЗАКЉУЧАК

У раду су приказани резултати мерења концентрација изотопа плутонијума у узорцима приземних слојева ваздуха са локације Института „Винча“. Обзиром на слабу заступљеност алфа мерења, ови резултати представљају значајан допринос употпуњавању слике о насталом радиозагађењу услед чернобилског акцидента.

У узорцима који потичу из времена интензивних нуклеарних проба детектовани су изотопи плутонијума $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu у концентрацијама од приближно $0,3 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ до $13,1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ и од приближно $0,1$ до $1,1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$

ваздуха, респективно. На основу података доступних у литератури [17, 21, 22], може се видети да концентрације плутонијумових изотопа у радиоактивним падавинама северне хемисфере у периоду до непосредно пре чернобиљског акцидента, показују изразити пад све до вредности од неколико десетина nBq/m^3 .

У узорцима из маја 1986. године концентрације изотопа плутонијума су износиле од $0,4 \mu\text{Bq/m}^3$ до $10,6 \mu\text{Bq/m}^3$ за $^{239,240}\text{Pu}$ и $0,3$ до $5,7 \mu\text{Bq/m}^3$ за ^{238}Pu . Осим детектованог пораста присуства плутонијума у ваздуху регистроване су и значајне промене у његовом изотопском саставу.

Наиме, познато је да радиоактивне падавине пореклом из нуклеарних акцидента, као што је Чернобиљ, карактерише висок однос $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (око $0,5$ [4]) у поређењу са истим мереним након нуклеарних проба који износи од $0,03 - 0,05$ [23]. Очекивано присуство осталих изотопа плутонијума у мереним узорцима је такође у сагласности са добијеним резултатима. Добијени резултати, приказани у табели 4, указују на нешто повишен однос $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ у односу на оне који су доступни у литератури што се може објаснити као последица пораста концентрације ^{238}Pu на филтерима услед распада ^{242}Cm ($T_{1/2} = 162,8$ дана), јер је од узорковања ваздуха до сепарације плутонијума прошло $4,5$ година.

Резултати алфаспектрометријских мерења плутонијумових изотопа у ваздуху током 1987. и 1989. године, на локацији Института Винча, показују вредности из пречернобиљског периода [3, 13].

У раду су дате и концентрације ^{241}Pu у узорцима из маја 1986. које су одређиване касније на основу алфаспектрометријског мерења концентрација ^{241}Am , његовог потомка. Концентрације активности ^{241}Pu у површинском слоју ваздуха биле су од $0,2 \text{mBq/m}^3$ до $7,8 \text{mBq/m}^3$. Вредности односа активности $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ биле су у опсегу од 50 до 150 .

Резултати приказаних вишегодишњих мерења објављени су у више публикација у међународним часописима, као и у саопштењима на домаћим и међународним конференцијама.

Захвалница

Експериментални рад при постављању примењених метода, узорковања и мерења узорака ваздуха финансијски је подржан од стране надлежних министарстава. У последњој фази, експериментални рад вршио се у оквиру пројекта (ОИ171018) Министарства просвете, науке и технолошког развоја РС.

Аутори рада исказују захвалност др Драгици Палигорић и др Душану Новковићу чијим су вишедеценијским ангажовањем коришћене методе постављене и дале међународно признате резултате.

7. ЛИТЕРАТУРА

- [1] <https://en.wikipedia.org/wiki/Plutonium>
- [2] Recommended Data, http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm
- [3] Table of Radioactive Isotopes, <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi>

- [4] J. E. Pinder III, K. W. McLeod and D. C. Adriano. Atmospheric deposition, resuspension, and root uptake of Pu in corn and other grain-producing agroecosystems near a nuclear fuel facility. *Health Physics* Vol 59 No 6 (1990) 853-867.
- [5] S. Kudra. Određivanje koncentracije izotopa $^{239,240}\text{Pu}$ i ^{238}Pu u prizemnim slojevima vazduha u periodu Černobiljskog akcidenta na lokaciji Beograda. Magistarski rad (1992) Fakultet za fizičku hemiju Univerziteta u Beogradu.
- [6] T. Jakkola and J. K. Miettinen. Distribution of fallout plutonium in southern Finns, Helena Mussalo. *Health Physics* 39 (1980) 245-255.
- [7] H. Hotzl and R. Winkler. Large Area Gridded Ionisation Chamber and Electrostatic Precipitation. Application to Low-Level Alphaspectrometry of Environmental Air Samples. *Nuclear Instruments and Methods* 150 (1978) 177-181.
- [8] Robert J. Budnitz. Plutonium: A review of measurement techniques for environmental monitoring (1973) Lawrence Berkley Laboratory, University of California, Berkley, CA 94720.
- [9] I. Vukanac. Određjivanje specifične alfa aktivnosti u uzorcima iz životne sredine poluprovodničkom spektrometrijom. Doktorska disertacija (2008), Fizički fakultet Univerziteta u Beogradu.
- [10] Measurement of Radionuclides in Food and Environment. A Guidebook, (1989) IAEA, Technical Reports Series No.295, Vienna.
- [11] I. Vukanac, D. Paligorić, D. Novković, M. Djurašević, Z. Obradović, Z. Milošević, S. Manić. Retrospective estimation of the concentration of ^{241}Pu in air sampled at Belgrade site following the Chernobyl accident. *Applied Radiation and Isotopes* 46 (2006) 689-692.
- [12] P. De Regge and R. Boden. Review of chemical separation techniques applicable to alpha spectrometric measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* Vol. 223 (1984) 181-187.
- [13] N. A. Talvitie. Electrodeposition of Actinides for alpha Spectrometric Determination. *Analytical Chemistry* Vol. 44 No. 2 (1972) 280-283.
- [14] D. Paligorić, S. Manić-Kudra, R. Smiljanić, D. Novković, Z. Milošević, M. Zarić, Article in proceedings of the 30th Symposium of Radiation Protection, pp. 505-510, Dubrovnik, 2-6 October 1989.
- [15] R. Smiljanić, D. Novković, D. Paligorić, Z. Milošević, M. Zarić. Determination of ^{137}Cs and ^{134}Cs in Air Samples Collected Near Belgrade (Yugoslavia) Following the Chernobyl Accident. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters* Vol 136 No 6 (1989) 437-442.
- [16] S. Manić-Kudra, D. Paligorić, D. Novković, R. Smiljanić, Z. Milošević, K. Subotić. Plutonium Isotopes in the Surface Air at Vinča-Belgrade Site in May 1986. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters* Vol 199 No1 (1995) 27-34.
- [17] K. Hirose and Y. Sugimura. Plutonium isotopes in the surface air in Japan: Effect of Chernobyl accident. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol 138 No 1 (1990) 127-138.
- [18] H. Hotzl, G. Rosner, R. Winkler. Ground Depositions and Air Concentrations of Chernobyl Fallout Radionuclides at Munich-Neuherberg. *Radiochimica Acta* Vol 41 No 4 (1987) 181-190.
- [19] G. Rosner, H. Hotzl, R. Winkler. Actinide Nuclides in Environmental Air and Precipitation Samples after the Chernobyl Accident. *Environment International* 14 (1988) 331-333
- [20] S. M. Jerome, D. Smith, M. J. Woods and S. A. Woods. Metrology of Plutonium for Environmental Measurements. *Applied Radiation and Isotopes* Vol. 46 No. 11 (1995) 1145-1150.
- [21] Komura, Kazuhisa; Sakanoue, Masanobu; Yamamoto, Masayoshi. Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Ratio in Environmental Samples Based on the Measurement of Lx/alpha-ray Activity Ratio. *Health Physics* 46 (1984) 1281.
- [22] W. Jeschki. The chernobyl experience. *Radiation Physics and Chemistry* Vol 34 No 2 (1989) 279-283

- [23] E. P. Hardy, P. W. Kray, H. L. Volchok. Global Inventory and Distribution of Fallout Plutonium. *Nature* 241 (1973) 444-445.

DETERMINATION OF PLUTONIUM ISOTOPES IN THE SURFACE AIR AT VINČA – BELGRADE SITE FOLLOWING CHERNOBYL ACCIDENT

Ivana VUKANAC¹, Suzana BOGOJEVIĆ², Mirjana ĐURAŠEVIĆ¹, Aleksandar KANDIĆ¹ and Zoran MILOŠEVIĆ¹

- 1) *Institute of Nuclear Sciences „Vinča“, Belgrade, Serbia, vukanac@vinca.rs*
- 2) *Serbian Institute of Occupational Health „dr Dragomir Karajović“, suzana.bogojevic@karajovic.rs*

For the purpose of regular monitoring of the concentration of radionuclides in aerosols, air sampling was carried out during the second half of XX century in four places at the Institute „Vinča“ site. Gross beta activities of the aerosols were determined daily. Since beta counting is not destructive method, these samples were subsequently used for the alpha spectrometric measurements.

Determination of fallout plutonium, as well as plutonium originated from the Chernobyl accident were performed by alpha spectrometry in the Laboratory for nuclear and plasma physics.

Air sampling was performed by pumps with filters. Air samples collected during May 1986 were measured by semiconductor HPGe spectrometer, and the following artificial radionuclides: ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹⁰⁶Ru, ¹²⁵Sb, ¹⁴⁴Ce and ^{110m}Ag were detected. Maximal concentration of cesium isotopes were observed on 02-03 May, while second maximum was detected on 06 May.

Alphaspectrometric measurements of plutonium isotopes indicated also that maximal concentration of ²³⁸Pu and ^{239,240}Pu occurred in the period 01-07 May. Obtained results were in agreement with ones reported in literature for locations of Prague, Munich, and Paris for the same period. Monitoring of air during 1987 and 1989 showed that plutonium isotopes concentrations were below minimal detectable values, except in spring time due to abundant precipitation.

The same plutonium sources, prepared during the 90s were re-measured in 2004 and 2005, in order to determine concentration of ²⁴¹Pu (pure beta emitter) by alpha spectrometry using “Am in-growth Method”. Activity of in-growth americium was determined experimentally, based on measured activity of ²²⁸Th, and additionally calculated using the contribution of ²³⁶Pu (used as a tracer) descendants obtained by the Bateman’s equations. Obtained activity ratios ²⁴¹Pu/^{239,240}Pu were within the limits cited in the literature.

The result of perennial measurement have been published in several publications in international journals, and presented at numerous national and international conferences. Comprehensive analysis of sample preparation, radiochemical procedure of plutonium separation from air samples, alpha - sources preparation techniques, analysis of recorded spectra, as well as analysis of obtained results for ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu and ²⁴¹Pu concentrations are presented in this paper.

CIP - Каталогизација у публикацији –
Народна библиотека Србије, Београд

614.876(082)

621.311.25(477.41)(082)

504.5:539.16(497.11)(082)

ЧЕРНОБИЉ : 30 година после : монографија / уредник
Гордана Пантелић. - Београд : Институт за нуклеарне науке
"Винча", Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту
животне средине "Заштита" : Друштво за заштиту од зрачења
Србије и Црне Горе, 2016 (Београд : Институт за нуклеарне
науке "Винча"). - 286 стр. : илустр. ; 25 cm

Тираж 150. - Библиографија уз сваки рад. - Summaries.

ISBN 978-86-7306-138-2 ("Винча")

1. Пантелић, Гордана [уредник]

а) Нуклеарна електрана "Чернобил" - Хаварија - Зборници

б) Животна средина - Загађење радиоактивним материјама

- Србија - Зборници с) Несреће у нуклеарним електранама

- Последице - Зборници d) Јонизујуће зрачење - Штетно

дејство - Србија - Зборници

COBISS.SR-ID 226685452